

N° D'ORDRE :
300

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

Jean-Pierre ANTHONY

1^{re} THÈSE. — ÉTUDE, AU PHOTOMULTIPLICATEUR, DES SCINTILLATIONS PRODUITES PAR
LES PARTICULES α DANS UN ÉCRAN DE SULFURE DE ZINC.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 21 juin 1955 devant la commission d'examen.

MM. L. DE BROGLIE *Président.*
LUCAS }
GRIVET } *Examineurs.*

PARIS

GAUTHIER-VILLARS, ÉDITEUR-IMPRIMEUR-LIBRAIRE

Quai des Grands-Augustins, 55

1958

N° D'ORDRE :
500

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE TITRE D'INGÉNIEUR-DOCTEUR

PAR

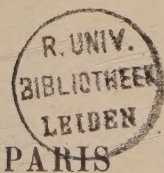
Jean-Pierre ANTHONY

1^{re} THÈSE. — ÉTUDE, AU PHOTOMULTIPLICATEUR, DES SCINTILLATIONS PRODUITES PAR
LES PARTICULES α DANS UN ÉCRAN DE SULFURE DE ZINC.

2^e THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 21 juin 1955 devant la commission d'examen.

MM. L. DE BROGLIE *Président.*
LUCAS }
GRIVET } *Examineurs.*



GAUTHIER-VILLARS, ÉDITEUR-IMPRIMEUR-LIBRAIRE
Quai des Grands-Augustins, 55

1958

FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

Doyen M. J. PERÈS.

PROFESSEURS

G. JULIA.....	T	Analyse supérieure et Algèbre supérieure.	FROMAGEOT.....	T	Chimie biologique.
E. DARMOIS.....	T	Enseignement de Physique.	LAPORTE.....	T	Physique générale et Radio-activité.
R. LÉVY.....	T	Physiologie comparée.	JANET.....	T	Mécanique analytique et Mécanique céleste.
FOCH.....	T	Mécanique physique et expérimentale.	PETIT.....	T	Biologie maritime.
PAUTHENIER.....	T	Électrotechnique générale.	QUENEY.....	T	Météorologie et Dynamique atmosphérique.
DE BROGLIE.....	T	Théories physiques.	GALLIEN.....	T	Embryologie.
JOB.....	T	Chimie générale.	EICHHORN.....	T	Biologie végétale (P. C. B.).
PRENANT.....	T	Anatomie et Histologie comparées.	DE CUGNAC.....	T	Biologie végétale (P. C. B.).
GARNIER.....	T	Géométrie supérieure.	M ^{lle} CAUCHOIS.....	T	Chimie physique.
PÈRÈS.....	T	Mécanique des fluides et applications.	THELLIER.....	T	Physique du Globe.
LAUGIER.....	T	Physiologie générale.	AUDUBERT.....	T	Électrochimie.
M. CURIE.....	T	Physique (P. C. B.).	L'HÉRITIER.....	T	Génétique.
BARRABÉ.....	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.	GRIVET.....	T	Radioélectricité.
G. DARMOIS.....	T	Calcul des probabilités et Physique mathématique.	PONCIN.....	T	Mécanique des fluides.
JACQUES BOURCART.....	T	Géographie physique et Géologie dynamique.	THIRY.....	T	Mécanique appliquée.
M ^{me} JOLIOT CURIE.....	T	Physique nucléaire et Radio-activité.	DUBREIL.....	T	Arithmétique et théorie des nombres.
PLANTEFOL.....	T	Botanique.	QUELET.....	T	Chimie organique.
CABANNES.....	T	Recherches physiques.	CAGNIARD.....	T	Géophysique appliquée.
GRASSÉ.....	T	Évolution des êtres organisés.	CHAMPETIER.....	T	Chimie macromoléculaire.
PRÉVOST.....	T	Chimie organique.	CUVILLIER.....	T	Géologie structurale et Géologie appliquée.
BOULIGAND.....	T	Applications de l'Analyse à la Géométrie.	JUNG.....	T	Pétrographie.
CHAUDRON.....	T	Chimie appliquée.	TRILLAT.....	T	Chimie physique.
WYART.....	T	Minéralogie.	WIEMANN.....	T	Chimie (M. P. C.).
TEISSIER.....	T	Zoologie.	JACQUINOT.....	T	Spectroscopie et Physique céleste.
MANGENOT.....	T	Biologie végétale.	VASSY.....		Physique de l'atmosphère.
P. AUGER.....	T	Physique quantique et Relativité.	DESTOUCHES.....		Théories physiques.
MONNIER.....	T	Physiologie des fonctions.	M. PRUVOST.....	T	Géologie.
PIVETEAU.....	T	Géologie.	AMIEL.....	T	Chimie (P. C. B.).
ROCARD.....	T	Physique (E. N. S.).	HOCART.....	T	Minéralogie.
H. CARTAN.....	T	Mathématiques (E. N. Supérieure).	J. P. MATHIEU.....	T	Physique (P. C. B.).
LAFFITTE.....	T	Chimie générale.	COUTEAUX.....	T	Biologie animale (P. C. B.).
FAVARD.....	T	Mécanique générale.	MAY.....	T	Biologie animale (P. C. B.).
COULOMB.....	T	Physique du Globe.	CHOQUET.....	T	Calcul différentiel et intégral.
M ^{lle} COUSIN.....	T	Biologie animale (P. C. B.).	FELDMANN.....		Biologie (P. C. B.).
CHRÉTIEN.....	T	Chimie minérale.	GUINIER.....	T	Physique (P. C. B.).
P. DRACH.....	T	Zoologie.	JOST.....	T	Biologie (P. C. B.).
KASTLER.....	T	Physique.	FORTET.....	T	Calcul des probabilités.
EPHRUSSI.....	T	Génétique.	SCHWARTZ.....	T	Méthodes mathématiques de la Physique.
WURMSER.....	T	Biologie physicochimique.	CHOUARD.....	T	Physiologie végétale.
RIVIÈRE.....	T	Géologie (S. P. C. N.).	MALAVARD.....	T	Aviation.
GAUTHERET.....	T	Biologie végétale (P. C. B.).	BRELOT.....	T	Calcul différentiel.
LUCAS.....	T	Physique.	NORMANT.....	T	Chimie (P. C. B.).
A. THOMAS.....	T	Physiologie cellulaire.	BENARD.....	T	Chimie (P. C. B.).
ARNULF.....	T	Optique appliquée.	BUVAT.....		Botanique (E. N. S.).
MAX MORAND.....	T	Physique.	DUGUÉ.....	T	Statistiques mathématiques.
SOLEILLET.....	T	Physique.	GELOSO.....		Chimie (S. P. C. N.).
FORTIER.....	T	Mécanique expérimentale des fluides.	SOULAIRAC.....		Psychophysiologie.
DANJON.....	T	Astronomie.	ULRICH.....	T	Physiologie végétale.
			MARÉCHAL.....	T	Optique théorique et appliquée.
			KIRRMANN.....	T	Théories chimiques.
			CHADEFAUD.....		Botanique.
			DESTRIAU.....		Physique (M. P. C.).
			M ^{lle} LE BRETON.....		Physiologie générale.
			SALEM.....		Mathématiques générales.

Secrétaire Général..... CH. MONIER.

Ces recherches ont été effectuées depuis 1951 au Laboratoire de Recherches sur les rayons X et la physique atomique, grâce à une allocation du Centre National de la Recherche Scientifique.

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde reconnaissance à M. Maurice de Broglie, pour la bienveillante attention qu'il a portée à mon travail et ses précieux encouragements.

Je prie M. G. Ambrosino, Sous-Directeur du Laboratoire, de bien vouloir croire à ma gratitude pour les conseils qu'il m'a donnés.

A la suite d'un échange de correspondance avec M. le Professeur J. B. Birks (Rhode University, Grahams-town, Afrique du Sud) j'ai repris, en les précisant, certaines des recherches exposées au chapitre IV. Je lui présente ici mes remerciements.

Je remercie M. R. Lucas pour avoir mis à ma disposition les locaux et le matériel du Laboratoire d'Optique de l'École Supérieure de Physique et Chimie industrielles et M. C. Vaurabourg, Chef de ce Laboratoire, pour son hospitalité.

Je suis heureux de remercier mon camarade R. Génin, Ingénieur E. P. C. I., Attaché de Recherches au C. N. R. S., qui m'a fait profiter de sa grande compétence en électronique.

Les dépôts minces d'oxyde d'uranium ont été préparés par M. Lang. MM. Saint-Faust et Agon m'ont successivement secondé pour les comptages relatifs à ces dépôts. Qu'ils veuillent bien trouver ici, ainsi que tous ceux qui m'ont encouragé et soutenu au cours de mes recherches, l'expression de mon amicale gratitude.

PREMIÈRE THÈSE.

ÉTUDE, AU PHOTOMULTIPLICATEUR, DES SCINTILLATIONS PRODUITES PAR LES PARTICULES α DANS UN ÉCRAN DE SULFURE DE ZINC APPLICATION A LA NUMÉRATION PRÉCISE DES PARTICULES α

SOMMAIRE.

Nous avons étudié les caractéristiques d'écrans de sulfure de zinc, activés à l'argent et contenant des traces de nickel, soumis à l'action des particules α .

Il est apparu que des impulsions de très grande taille pouvaient être obtenues du photomultiplicateur et nous avons été amené à soigner particulièrement la partie électronique du montage, de façon à attribuer les écarts à la linéarité qu'on pourrait constater au photomultiplicateur lui-même. Une controverse à ce sujet avec MM. J. F. Raffle et E. J. Robbins (Nuclear Physics Research Laboratory, Université de Liverpool) nous a obligé à reprendre nos expériences pour les préciser. Les résultats obtenus nous ont confirmé la qualité des photomultiplicateurs EMI 5311, dont la réponse est proportionnelle à l'excitation pour une intensité en pointe du courant de fuite atteignant 1 mA.

Nous avons ensuite étudié la variation de la réponse du système avec le parcours des particules α dans l'écran et trouvé que le comportement des écrans de sulfure de zinc, pour des énergies comprises entre 0 et 5,3 MeV était assez semblable à celui trouvé par J. B. Birks [31] pour certains cristaux organiques, la loi linéaire de Kallmann ne constituant qu'une première approximation.

Une application directe de cette étude a été la mesure du parcours des particules α du plutonium, ^{239}Pu .

Enfin, la grande stabilité en fonction du temps du détecteur, qui n'est pas altéré par l'impact des particules et ne subit pas de dégradations physiques ou chimiques au contact de l'air, en fait un scintillateur de choix pour les comptages lents devant être poursuivis pendant de longs laps de temps. Cette qualité est d'autant plus précieuse qu'elle s'accompagne d'une grande simplicité des circuits électroniques associés, facteur de sécurité et de stabilité de fonctionnement.

A titre d'application, nous traiterons du problème de la mise en évidence des variations de composition isotopique de l'uranium, de l'étude de la contamination de l'air et d'une méthode de dosage en surface du bismuth.

CHAPITRE I.

INTRODUCTION.

Historique des procédés de détection par scintillation.

Sir William Crookes et, indépendamment J. Elster et H. Geitel découvrirent en 1903 que les rayons α émis par les substances radioactives naturelles ont la propriété d'exciter la luminescence d'un écran couvert de grains de sulfure de zinc. Examinée avec un faible grossissement, la surface de cet écran présente des points brillants, irrégulièrement répartis et dont la luminosité apparaît brusquement, puis s'éteint.

Ce fut E. Regener qui, le premier, eut l'idée d'utiliser le spinthariscopes de Sir William Crookes pour compter les particules α frappant l'écran. Cette méthode fut largement utilisée par Sir Ernest Rutherford et l'École de Cambridge pour l'étude de la déviation des rayons α par les milieux matériels et des premières réactions nucléaires provoquées. Elle s'avéra d'une grande sensibilité et d'un puissant intérêt, permettant également de détecter les protons émis dans les transmutations [1].

Mais les comptages étaient fastidieux, pénibles pour l'observateur et imposaient des sources de faible activité. Aussi le spinthariscopes fut-il abandonné pour les détecteurs fondés sur l'ionisation produite par les particules chargées : compteur proportionnel (E. Rutherford et H. Geiger, 1908), compteur à pointe (H. Geiger, 1913), compteur à fil (H. Geiger et W. Müller, 1928), compteur à étincelle (H. Greinacher, 1934; S. Rosenblum, W. Y. Chang et S. Rosenblum, 1945). Entre temps, les progrès de l'électronique faisaient évoluer les méthodes de mesure : amplificateur à lampe associé à un compteur à pointe (H. Greinacher, 1924) ou à une chambre d'ionisation (H. Greinacher, 1926). L'appareil enregistreur n'est plus l'électromètre à corde, à binants ou à quadrants, mais l'oscillographe cathodique ou le numérateur, électromécanique d'abord, puis précédé d'une démultiplication électronique (échelle).

Parallèlement, se développaient les méthodes photographiques, fondées sur l'observation de Henri Becquerel (action des rayonnements sur l'émulsion photographique, 1896), et C. T. R. Wilson, découvrant que les ions produits dans les gaz par les rayons α et β peuvent servir de centres de condensation pour la vapeur d'eau sursaturée (1911), appliqua cette propriété à l'enregistrement photographique des traces laissées par des particules individuelles dans la chambre d'expansion (1912-1923).

En 1944, S. C. Curran et W. Baker proposèrent de revenir au spinthariscopes, en remplaçant l'œil par une cellule à multiplicateur d'électrons. H. Kallmann montra que les scintillations produites dans le sulfure de zinc par les particules α pouvaient être détectées par cet appareil et transformées en impulsions électriques. Très rapidement, on montrait que les rayons β et γ , donnaient aussi des scintillations et l'on passait en revue un très grand nombre de corps minéraux ou organiques, susceptibles de servir de détecteurs (on trouvera une étude bibliographique sur les photomultiplicateurs et les principaux scintillateurs utilisés dans [3] et [4]).

L'association scintillateur-photomultiplicateur présente de nombreux avantages sur les autres méthodes de détection (rendement de détection important, proportionnalité entre la hauteur des impulsions et l'énergie de la particule détectée, pouvoir de résolution élevé). En outre, on peut montrer que le rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$ est beaucoup plus favorable lorsque l'amplification est réalisée par multiplication des électrons que lorsqu'on associe une cellule photoélectrique à un amplificateur à tubes électroniques classiques de même gain total [5]. La forme et les dimensions du scintillateur donnent une grande souplesse à cette méthode de détection, soit qu'on veuille limiter l'angle utile (corrélations angulaires), soit au contraire qu'on cherche à mettre en évidence des particules interagissant peu avec la matière (essai de détection du neutrino avec une cuve contenant 300 l de scintillateur liquide).

Lorsque nous avons abordé le travail, qui fait l'objet de cette Thèse (1951), le sulfure de zinc avait été à peu près totalement écarté comme scintillateur. H. Kallmann [6] avait établi une relation linéaire entre la hauteur des impulsions de tension recueillie sur l'électrode collectrice et l'énergie des particules α , au moins dans le domaine de 0 à 5 MeV. Il admettait que la durée des scintillations était de l'ordre de 10 μ s, ou moins. Mais les informations qu'on possédait sur la durée de fluorescence et sa loi de décroissance avec le temps provenaient des études des Écoles anglaise et russe sur le comportement des substances minérales fluorescentes.

CHAPITRE II.

DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE UTILISÉ.

Des particules α monoénergétiques frappent un écran mince de sulfure de zinc activé à l'argent et contenant des traces de nickel, placé au voisinage de la photocathode d'un multiplicateur d'électrons.

La tension appliquée au photomultiplicateur est choisie telle que les impulsions de tension recueillies sur l'électrode collectrice soient suffisamment grandes pour être étudiées sans amplification.

La partie électronique du montage (*fig. 1*) se compose donc d'un étage déphaseur destiné à transformer les impulsions négatives sortant du photomultiplicateur en impulsions positives capables d'actionner un discri-

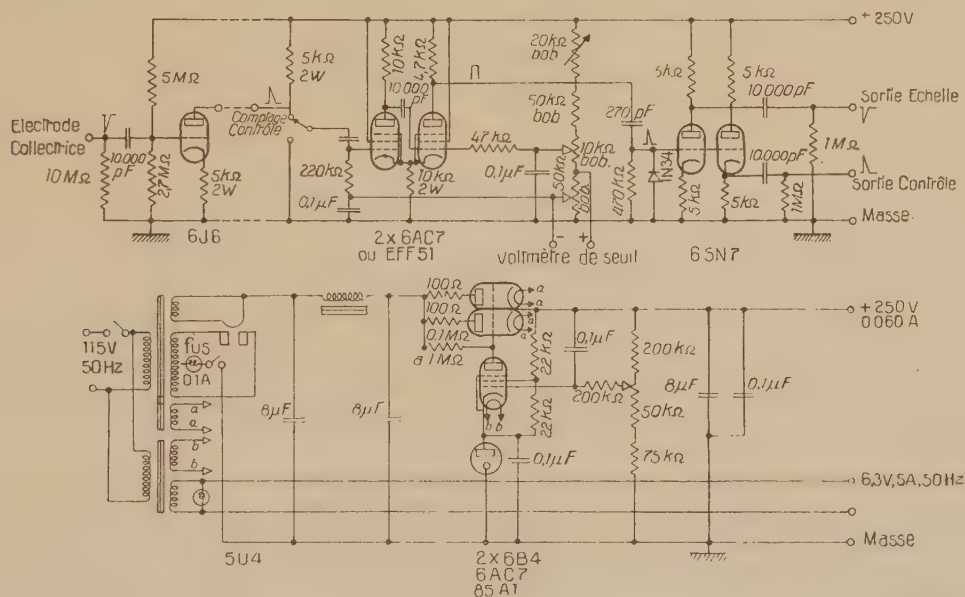


Fig. 1. — Discriminateur à seuil et alimentation stabilisée 200-300 V, 60 mA.

minuteur à seuil. Pour le choix des constantes de temps du discriminateur et de la déphaseuse, nous avons adopté, pour durée des scintillations produites dans l'écran, la seule valeur publiée à cette époque :

$$\tau \leq 10^{-5} \text{ s} \quad [6], [9].$$

Nous pensons qu'il n'est pas inutile de décrire en détail l'appareillage utilisé, pour en faire ressortir les qualités de stabilité et de linéarité qui ont été mises à profit dans la suite de ce travail.

2.1. Photomultiplicateur.

Le photomultiplicateur utilisé est du type EMI 5311. La photocathode, terminale et plane, a une surface de 5 cm² (diamètre 1 pouce). Sa sensibilité spectrale présente un maximum vers 5 400 Å, ce qui est avantageux pour la détection des scintillations produites dans ZnS (Ag).

Les photoélectrons produits sont accélérés par un champ électrique et viennent frapper la première électrode multiplicatrice (dynode) d'où ils extraient des électrons secondaires. Ceux-ci sont repris par un champ accélérateur, et ainsi de suite, un photoélectron donnant ainsi une cascade d'électrons secondaires qui sont

recueillis par l'électrode collectrice, qui, au repos, est au potentiel de la masse, la photocathode étant au potentiel $-V$, variant de -1000 à $-2\,200$ V dans nos expériences.

Les dynodes sont polarisées par un pont de résistances entre la haute tension et la masse; les quatre dernières étant découplées par des condensateurs C. Dans le montage que nous avons utilisé, les valeurs étaient les suivantes :

$$\begin{aligned} R &= 2,7\text{ M}\Omega, \\ C &= 560\text{ pF}. \end{aligned}$$

Les condensateurs introduits ont pour but d'éviter que le courant exigé de la dynode au moment du passage de l'avalanche électronique ne provoque une variation trop importante de son potentiel. Les valeurs de R et de C ainsi choisies nous ont toujours donné satisfaction.

Les dynodes du photomultiplicateur EMI 5311 sont du type dit persiennes vénitiennes. Ce dispositif est complété de deux fines grilles métalliques, portées au même potentiel que la dynode et destinées à modifier le champ électrique au voisinage de celle-ci de telle sorte que les électrons secondaires émis sur le bord supérieur d'un élément de la dynode ne soient pas capturés par le bord inférieur [7] (fig. 2).

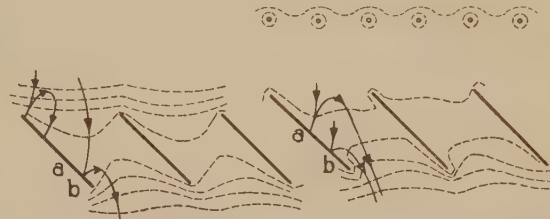


Fig. 2. — Équipotentielles (en pointillé) et trajectoires électroniques au voisinage des dynodes-cibles [7].
Sans grille Avec grille
La portion utile de la dynode est indiquée en a-b.

Les trajectoires électroniques à l'intérieur du photomultiplicateur ne sont pas focalisées. Il en résulte quelques précautions dans l'emploi de ces appareils.

Le photomultiplicateur sera protégé des champs magnétiques extérieurs par une enveloppe en fer doux, en forme de cylindre fermé à une extrémité, et à travers lequel seront ménagées les connexions de haute tension et de sortie des impulsions. Les isollements doivent être soignés pour éviter les crachements. La photocathode est dans le plan de l'extrémité ouverte, afin d'être facilement accessible à l'expérimentateur. La coque métallique est, par construction, étanche à la lumière. Le montage du scintillateur et de la préparation radioactive étudiée constitue un capot obturateur pour le boîtier.

Lorsqu'on dit que ce type de photomultiplicateur est sans focalisation, il faut entendre que les dynodes sont planes et parallèles. Lorsqu'on le met sous tension et que la photocathode est excitée, les électrons émis par les bords de la photocathode et des dynodes peuvent être capturés par le verre de l'enveloppe et s'y fixer. Ils contribuent ainsi à créer un champ électrostatique qui tend à repousser les électrons de l'avalanche vers l'axe du multiplicateur. Il y a ainsi focalisation et le gain du photomultiplicateur se stabilise quand l'équilibre est atteint entre les nombres d'électrons émis et capturés par le verre. Cet équilibre est déplacé quand on fait varier l'excitation de la photocathode. Il est toujours nécessaire d'attendre 1 h ou 2 après la mise sous tension du tube et, pour des mesures très précises, nous préférons mettre le photomultiplicateur sous tension plusieurs jours à l'avance.

Ces remarques nous semblent à rapprocher de celles faites par R. L. Caldwell et S. E. Turner sur les photomultiplicateurs RCA 5819 et Dumont 6292 [8].

2.1.1. REMARQUES SUR L'UTILISATION DU CALCUL SYMBOLIQUE.

Dans les paragraphes qui vont suivre, nous ferons appel au calcul symbolique pour étudier les propriétés du montage en régime d'impulsions. Selon l'usage généralement admis actuellement, nous nous servons de la transformation de Laplace qui, à une fonction $F(t)$ associe l'image $\mathcal{F}(p)$ par la relation

$$\mathcal{F}(p) = \int_0^{+\infty} e^{-pt} F(t) dt.$$

Pour la transformation de Laplace et ses propriétés, nous renvoyons, par exemple, aux *Compléments de Mathématiques à l'usage des Ingénieurs de l'Électrotechnique et des Télécommunications*, de A. Angot (éditions de la Revue d'Optique, Paris, 1949), et, pour les applications que nous en ferons, à [11].

L'étude des régimes transitoires fait intervenir un signal particulier, $u(t) = \gamma(t)$, tel que

$$\begin{aligned} u(t) &= 0 & \text{pour } t < 0, \\ u(t) &= 1 & \text{pour } t > 0. \end{aligned}$$

La fonctionnelle $\gamma(t)$ est la « fonction unité » de Heaviside, ou échelon unité. Elle joue, dans l'étude des régimes transitoires, un rôle analogue à celui du signal sinusoïdal pur pour les régimes permanents. On montre que

$$\gamma(t) \sqsubset \frac{1}{p}.$$

Nous n'établirons pas les correspondances symboliques que nous allons utiliser dans ce qui suit, et, pour leur justification, nous renvoyons aux Ouvrages cités ci-dessus.

2.1.2. CONSTANCE DE TEMPS DU CIRCUIT DE FUITE DU PHOTOMULTIPLICATEUR.

Les signaux recueillis sur l'électrode collectrice sont appliqués à un circuit composé de :

- la résistance de fuite du photomultiplicateur, ρ , shuntée par une capacité parasite γ ;
- de la capacité de liaison C ;
- des deux résistances r_1 et r_2 de polarisation de la grille du tube d'entrée. L'impédance de la source de tension étant faible, tout se passe comme si r_1 et r_2 étaient en parallèle. Soit r la résistance équivalente.

On peut montrer que la constante de temps du circuit de fuite du photomultiplicateur est

$$\frac{\rho r}{\rho + r} \gamma.$$

En effet, considérons la figure 3, schématisant ce circuit :

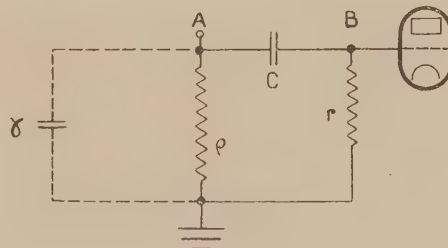


Fig. 3.

et supposons qu'au temps $t = 0$, le photomultiplicateur débite en A un courant unité I_0 , que nous représenterons par le signal échelon unité.

Soit $R(t)$ la variation de potentiel en B, consécutive à l'apparition de ce signal et $i(t)$ le courant qui traverse la résistance r ,

$$R(t) = r i(t).$$

Soit $\mathcal{J}(p)$ l'expression symbolique du courant i ,

$$i(t) \sqsubset \mathcal{J}(p).$$

Comme

$$\gamma(t) \sqsubset \frac{1}{p},$$

(2.1)

$$\mathcal{J}(p) = \frac{\rho C}{(1 + \rho \gamma p)(1 + r C p) + \rho C p} = \frac{\rho C}{D(p)}.$$

Il suffit, pour obtenir cette équation, d'écrire les relations de Kirchhoff pour le montage de la figure 3. Si nous appelons p_n les pôles de $\mathcal{J}(p)$, le théorème du développement nous permet d'écrire

$$i = \sum_n \frac{C \rho}{D'(p_n)} e^{+p_n t}$$

et

$$(2.2) \quad R(t) = r \sum_n \frac{\rho C}{D'(p_n)} e^{p_n t}.$$

$D(p)$ est un trinôme du second degré en p , dont les racines sont

$$p = \frac{\rho\gamma + C(r + \rho)}{2r\rho\gamma C} \left\{ 1 \pm \sqrt{1 - \frac{4r\rho\gamma C}{[C(r + \rho) + \rho\gamma]^2}} \right\}.$$

Donnons dès maintenant les valeurs numériques des éléments du circuit pour justifier les approximations que nous ferons. Nous avons adopté, pour deux séries de mesures :

$$\begin{array}{ll} r = 1,7 \text{ M}\Omega & \text{pour } 0,002 \text{ M}\Omega \leq \rho \leq 1,09 \text{ M}\Omega, \\ r = 10,73 \text{ M}\Omega & \text{pour } 0,1 \text{ M}\Omega \leq \rho \leq 63 \text{ M}\Omega, \end{array}$$

avec, dans les deux cas

$$C = 10\,000 \text{ pF}, \quad \gamma = 20 \text{ pF}.$$

Dans ces conditions, on peut développer la quantité sous le radical en se limitant au premier terme; d'autre part

$$D'(p_1) = -D'(p_2),$$

de telle sorte que (2.2) se mette sous la forme

$$(2.3) \quad R(t) \sim \frac{r\rho}{r + \rho} \left\{ \exp \left[\frac{-t}{(r + \rho)C} \right] - \exp \left[\frac{-t(r + \rho)}{r\rho\gamma} \right] \right\}.$$

En régime d'impulsions brèves, seule la seconde exponentielle intervient, car $(r + \rho)C \cong 4 \cdot 10^3 \frac{\rho r}{r + \rho} \gamma$ et le circuit introduit bien une constante de temps

$$(2.4) \quad -\frac{1}{p_2} = \frac{r\rho}{r + \rho} \gamma.$$

Le signal réel envoyé en A par le photomultiplicateur ne reste pas constant, mais, après s'être établi en un temps bref, décroît exponentiellement avec le temps

$$I_0 = I(t) e^{-kt} \quad (k > 0).$$

Son image est

$$J(p) = \frac{1}{p + k}.$$

$R(t)$ se décompose alors en trois exponentielles, $e^{p_1 t}$, $e^{p_2 t}$ et e^{-kt} , p_1 et p_2 ayant les mêmes valeurs que dans le cas que nous venons de traiter. Pour une impulsion brève, le seul coefficient fonction des paramètres du réseau sera

$$p_2 = -\frac{\rho + r}{r\rho\gamma}$$

et, si nous voulons intégrer les signaux, nous prendrons

$$k > p_2 \gg p_1.$$

2.2. Alimentation haute tension.

La tension de polarisation de la photocathode et des dynodes est fournie par une alimentation C. E. A. 2 500 V, stabilisée. Par mesure de précaution, nous avons constamment contrôlé la tension de sortie à l'aide d'un voltmètre A. O. I. P., à 20 000 $\Omega \cdot V^{-1}$.

On constate que, lors de la mise en service et pendant les premiers quarts d'heure, la tension dérive légèrement (une vingtaine de volts), puis, quand les éléments ont atteint leur température de régime, demeure stable pendant des jours (variations inférieures à ± 5 V).

2.3. Discriminateur et alimentation + 250 V (fig. 1).

Pour l'analyse des impulsions fournies par le photomultiplicateur, nous avons utilisé un discriminateur à seuil, analogue à celui décrit par K. I. Roulston [10].

2.3.1. CIRCUIT D'ENTRÉE, DÉPHASEUSE SYMÉTRIQUE.

Les qualités d'un discriminateur à seuil sont meilleures lorsqu'il accepte des impulsions positives (entrée sur une lampe bloquée) que dans le cas contraire. Aussi, les signaux recueillis sur l'électrode collectrice du photomultiplicateur étant négatifs, il est nécessaire de les changer de signe, ce qu'on fait avec une triode (6 J 6) montée en inverseuse de phase symétrique (résistance d'anode = résistance de cathode). Ce montage a, en outre, l'avantage de ramener l'impédance de sortie du photomultiplicateur à une valeur correcte, permettant le transport du signal par câble jusqu'au discriminateur, sans perte appréciable de taille.

Pour étudier ce montage, nous allons introduire l'équation caractéristique de la triode sous une forme un peu différente de l'équation classique

$$rI = \mu u + V,$$

formule dans laquelle les lettres ont la signification suivante :

- r , résistance interne du tube;
- I , courant anodique;
- μ , coefficient d'amplification;
- u , différence de potentiel grille-cathode;
- V , différence de potentiel anode-cathode.

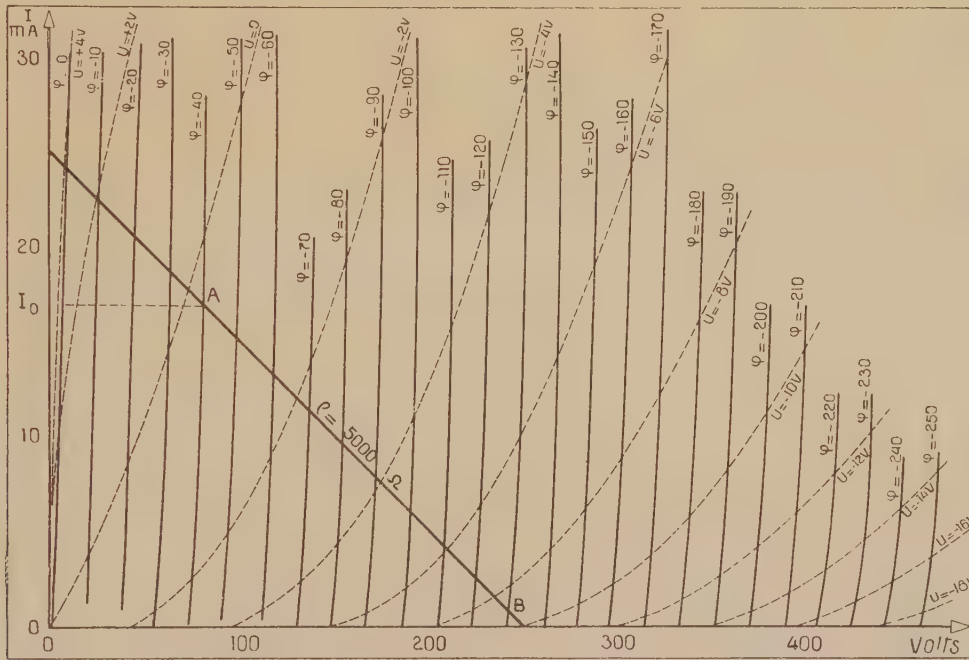


Fig. 4. — Caractéristiques de Malatesta de la 6 J 6, les deux triodes étant en parallèle, utilisée en déphaseuse symétrique :

Les potentiels d'anode et de cathode étant variables, on peut prendre comme paramètre φ la différence entre le potentiel de la grille par rapport à la masse et la demi-somme des potentiels d'anode et de cathode, cette demi-somme égale à la moitié de la tension d'alimentation est, en effet, constante [11] (voir à ce sujet l'article de S. Malatesta [12]).

Avec cette notation, l'équation de la triode s'écrit

$$rI = \mu \varphi + V \left(1 + \frac{\mu}{2} \right).$$

Pour déterminer le point de fonctionnement du montage, nous allons passer des caractéristiques données par le constructeur $I = f(V, u)$ au réseau

$$I = g(V, \varphi).$$

On obtient ainsi les courbes en trait plein de la figure 4, les deux moitiés du tube étant montées en parallèle.

La résistance interne est, de ce fait, égale à la moitié de celle indiquée par le constructeur. Nous pouvons déterminer le point de fonctionnement comme l'intersection des courbes

$$I = g(V, \varphi)$$

et de la droite de charge $V = E - 2ZI$, Z étant l'impédance d'anode (égale à l'impédance de cathode).

Nous voyons ainsi qu'il est nécessaire de polariser la grille pour obtenir un recul permettant de transmettre les impulsions sans les écrêter.

Supposons qu'on veuille une région linéaire de 90 V, avec une tension d'alimentation de 250 V. la courbe $\varphi = -130$ coupe la droite de charge en B. Il faut trouver un point de fonctionnement A correspondant à

$$\varphi_0 = 90 - 130 = -40 \text{ V,}$$

ce qui entraîne, pour le potentiel grille, en l'absence d'impulsion

$$u_0 = -40 + \frac{250}{2} = 85 \text{ V}$$

et un courant à vide de 17 mA, si les deux triodes sont montées en parallèle.

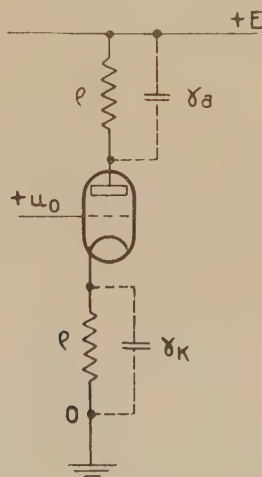


Fig. 4 bis.

$$\varphi = u_g - \frac{u_a + u_k}{2}.$$

En pointillé, caractéristiques : $I = f(u_g - u_k, u_a - u_k)$.

Dans le choix de la région linéaire, on peut voir que le point de fonctionnement A doit rester à droite de la courbe $u = 0$. Lorsque A se rapproche de cette courbe ou la traverse, le courant grille qui apparaît tend à compenser la polarisation imposée à la grille et à ramener le point A sur la courbe $u = 0$.

Gain et impédance de sortie de la déphaseuse. — Reprenons l'équation de la triode sous la forme

$$rI = \mu u + V.$$

Supposons que les résistances de charge d'anode et de cathode soient égales et soit ρ leur valeur commune, γ_a et γ_k seront les capacités parasites anodique et cathodique

$$\begin{aligned} u_k &= Z_k I, \\ u_a &= Z_a I, \\ rI &= \mu(u_g - Z_k I) + E - (Z_a + Z_k)I. \end{aligned}$$

Si la grille subit une variation de potentiel u , il s'ensuit une variation i du courant anodique, telle que

$$\begin{aligned} ri &= \mu(u - Z_k i) - (Z_a + Z_k)i, \\ i[r + Z_k(\mu + 1) + Z_a] &= \mu u. \end{aligned}$$

Les signaux de sortie prélevés sur l'anode ou sur la cathode ont respectivement pour valeur absolue $Z_a i$ et $Z_k i$. On pourra définir un gain anodique et un gain cathodique

$$G_a = Z_a \frac{i}{u},$$

$$G_k = Z_k \frac{i}{u}.$$

Étudions plus particulièrement le gain anodique.

$$(2.7) \quad G_a = \frac{\mu Z_a}{r + Z_k(\mu + 1) + Z_a} = \frac{\mu}{1 + \frac{r}{Z_a} + (\mu + 1) \frac{Z_k}{Z_a}},$$

Z_a est constitué de la résistance ρ shuntée par la capacité γ_a .

Dans ces conditions, le gain anodique est

$$(2.8) \quad G_a = \frac{\mu}{1 + \frac{r}{\rho} + p r \gamma_a + (\mu + 1) \frac{1 + p \rho \gamma_a}{1 + p \rho \gamma_k}} = \frac{\mu \rho}{r + (\mu + 2) \rho} \frac{1 + p \rho \gamma_k}{1 + \frac{p \rho}{r + (\mu + 2) \rho} \{ \gamma_a [(\mu + 1) \rho + r] + \gamma_k [\rho + r(1 + p \rho \gamma_a)] \}},$$

qu'on peut mettre sous la forme équivalente

$$(2.9) \quad G_a = \frac{\mu \rho}{r + (\mu + 2) \rho} \frac{1}{1 + p \rho \left\{ \frac{\gamma_a - \gamma_k}{1 + p \rho \gamma_k} \frac{r + (\mu + 1) \rho}{r + (\mu + 2) \rho} + \frac{\gamma_k r}{r + (\mu + 2) \rho} \frac{1 + p \rho \gamma_a}{1 + p \rho \gamma_k} \right\}}.$$

Sous la forme générale (2.8), on verrait que la réponse du système à un signal échelon unité est monotone pourvu que

$$\gamma_a > \gamma_k.$$

Cette condition est vérifiée par construction.

Pour obtenir une expression simplifiée du gain et de l'impédance de sortie, nous supposons

$$\gamma_a = \gamma_k = \gamma.$$

Dans ces conditions (2.9) prend la forme

$$(2.10) \quad G_a = \frac{\mu \rho}{r + (\mu + 2) \rho} \frac{1}{1 + p \frac{\rho r \gamma}{r + (\mu + 2) \rho}}.$$

Le premier facteur est le gain en basse fréquence (correspondant à $p = 0$); le second, correspondant à la partie haute fréquence, est le « gain normalisé » [11]. Or, pour un étage amplificateur ordinaire à résistance capacité, on a

$$G = \frac{1}{1 + p R C}.$$

La comparaison avec l'équation (2.10) montre que tout se passe comme si la déphaseuse symétrique présentait une résistance de sortie donnée par

$$R = \frac{r \rho}{r + \rho(\mu + 2)}.$$

Si la résistance de charge, ρ , n'est pas trop faible et si le tube utilisé possède un coefficient d'amplification élevé la résistance de sortie sera peu différente de

$$\frac{r}{\mu} = \frac{1}{s} \quad (s \text{ est appelée pente du tube}),$$

et, dans les mêmes hypothèses, le gain aux fréquences basses est $\frac{\mu}{\mu + 2}$ toujours légèrement inférieur à l'unité,

Dans le montage que nous avons réalisé, le tube utilisé est une double triode, 6 J 6, les deux moitiés étant

montées en parallèle. Les caractéristiques de chaque élément sont :

Coefficient d'amplification	$\mu = 38$
Résistance interne	$= 7\,1000\,\Omega$ (donc $r = 3\,550\,\Omega$)
Pente	$s = 5\,300 \cdot 10^{-6}\,\Omega^{-1}$

Nous avons pris

$$\rho = 5\,000\,\Omega.$$

Dans ces conditions, l'impédance de sortie est $87\,\Omega$. Le gain en basse fréquence est 0,930, mais le gain réel sera plus faible, à cause du terme haute fréquence, inférieur à l'unité.

On peut considérer ce montage comme un amplificateur à contre-réaction puisque le signal recueilli sur l'anode ($-Z_a i$) est réinjecté totalement sur la cathode ($+Z_k i$, mais $Z_a = Z_k$, puisque $\gamma_a = \gamma_k$) en opposition de phase avec la tension d'entrée sur la grille, donc $\beta = 1$.

Si G_0 est le gain sans contre-réaction, le gain G réel est

$$G = \frac{G_0}{1 + \beta G_0}.$$

Mais

$$G_0 = \frac{\mu Z}{r + 2Z}.$$

Par suite

$$G = \frac{\mu Z}{r + Z(\mu + 2)},$$

$$\beta = 1,$$

On retrouve ainsi la formule (2.7) avec $Z = Z_a = Z_k$.

La déphaseuse symétrique introduit ainsi le même facteur de stabilité que le cathode-follower (amplificateur à cathode asservie), si le coefficient d'amplification varie au cours du temps (variation du courant de chauffage par exemple). En effet

$$dG = \frac{dG_0}{(1 + \beta G_0)^2}.$$

Or

$$\beta G_0 = \frac{\mu Z}{r + 2Z} \ll 1.$$

Avec les valeurs du montage

$$dG \sim \frac{dG_0}{120}.$$

Temps de montée. — L'équation symbolique (2.8) montre que la réponse de la déphaseuse à un signal échelon unité est monotone. Dans ces conditions, l'on pourra définir un temps de montée, T_M , qui caractérisera la déformation introduite par le système à un front raide d'impulsion.

Si l'on prend pour T_M la définition d'Elmore

$$T_M^2 = k \int_0^\infty (t - t_g)^2 R(t) dt,$$

t_g étant l'abscisse du centre de gravité de la réponse $R(t)$ du circuit à une impulsion, R. Génin [11] montre que pour un étage amplificateur à résistance-capacité, on a

$$(2.11) \quad T_M = \rho\gamma \sqrt{2\pi},$$

ρ et γ étant la résistance de charge et la capacité parasite d'anode.

Dans le cas de la déphaseuse symétrique, on améliorera le temps de montée, défini ci-dessus, par la formule (2.11) si l'on réalise la condition

$$1 \leq \frac{\gamma_a}{\gamma_k} \leq 1,480,$$

car l'on aura

$$\frac{r}{r + \rho(\mu + 2)} \leq \frac{T_M}{\rho\gamma \sqrt{2\pi}} \leq 1,$$

ce qui nous donne avec les valeurs précédentes et en supposant $\gamma \sim 10$ pF,

$$2,2 \cdot 10^{-9} \text{ s} \leq T_M \leq 1,2 \cdot 10^{-7} \text{ s}.$$

Comme dans le cas réel $\gamma_a > \gamma_k$ nous admettrons un temps de montée de l'ordre de 0,1 μ s.

Un second avantage de ce circuit d'entrée est de permettre la transmission par câble coaxial du signal sans atténuation notable.

L'installation de comptage a, en effet, été réalisée de telle façon que la déphaseuse est fixée directement sur le boîtier du photomultiplicateur, avec une connexion de grille aussi courte que possible. La transmission des impulsions au discriminateur se fait par un câble coaxial dont la longueur varie, selon le montage, de 15 à 80 cm, et dont l'impédance caractéristique est 75 Ω .

La résistance de charge anodique est placée à l'extrémité de ce câble, à l'intérieur du discriminateur, de telle sorte qu'il se trouve fermé sur une impédance relativement faible. On évite ainsi les réflexions du signal sur l'extrémité du câble, qui pourraient se produire s'il était fermé sur une trop grande impédance (résistance de fuite de grille).

2.3.2. DISCRIMINATEUR D'AMPLITUDE.

On appelle discriminateur à seuil un dispositif qui délivre une impulsion de caractéristiques définies chaque fois qu'il reçoit un signal de forme convenable et de taille supérieure à une taille qu'on s'est fixée à l'avance (seuil). Dans celui que nous décrivons, en l'absence de signal, la pentode de gauche de la bascule est bloquée, sa grille de commande g_1 étant à un potentiel inférieur à celui de la grille de commande du tube de droite g_2 (sensiblement 90 V). Le courant traversant la cathode commune est tel que

$$u_k - u_{g_2} = 0.$$

Supposons qu'on envoie sur g_1 des impulsions positives, de taille suffisante pour amener momentanément le potentiel de g_1 au-dessus de celui de g_2 . Le tube de gauche conduit et il apparaît sur son anode un signal négatif de taille $R_{a_1} i_{a_1}$. Cette impulsion est transmise à la grille de commande du tube de droite, dont le potentiel décroît. Le mouvement de bascule est accéléré du fait que le courant cathodique reste sensiblement constant et, très rapidement, c'est le tube de gauche qui est conducteur et le tube de droite bloqué, et il apparaît dans son circuit d'anode un signal positif à front raide.

Si l'impulsion envoyée sur g_1 n'est pas trop longue, lorsque g_1 revient à son potentiel initial, le système bascule à nouveau et revient dans sa position d'attente. En définitive, l'arrivée d'une impulsion positive sur g_1 provoque dans le circuit d'anode de la lampe de droite, un signal rectangulaire positif, d'amplitude $R_{a_1} i_{a_1} \sim 18$ V.

Le signal de bascule est envoyé à une double triode à cathodes séparées (6 SN 7) ou à une pentode montée en triode (6 SJ 7), utilisée en déphaseuse symétrique, car la plupart des échelles de comptage fonctionnent avec des impulsions négatives. Dans ce cas, le montage est étudié par la méthode de Malatesta, mais on voit qu'il n'est pas nécessaire de polariser la grille de commande et le courant à vide est faible.

Adaptation des constantes de temps. — La capacité de liaison plaque-grille de la bascule régit la durée du signal délivré par le discriminateur. Il est essentiel que cette durée soit au moins égale à celle du signal envoyé sur la grille g_1 .

Mais on devra donner à cette capacité de liaison la valeur la plus faible possible, car elle définit le plus petit intervalle de temps qui doit séparer deux impulsions pour qu'elles soient comptées séparément (temps mort).

Dans notre montage initial, les impulsions fournies par le photomultiplicateur étaient allongées exagérément, par suite de la grande valeur donnée à la constante de temps du circuit d'entrée (10⁻⁴ s), et le temps mort avait une valeur du même ordre que cette dernière, ce qui n'était pas trop gênant pour des comptages lents. Par la suite, nous avons diminué la constante de temps du circuit d'entrée, ce qui supprime la queue de l'impulsion et, du même coup, nous avons pu gagner sur la capacité de liaison et le temps mort de la bascule.

Il faut signaler que la largeur du signal délivré par la bascule est fonction du seuil de discrimination, et diminue quand ce dernier augmente. Il en résulte que le temps mort varie également avec le seuil, et en sens inverse.

On peut déterminer le temps mort, τ , soit à l'aide d'un générateur d'impulsion étalonné en fréquence, soit avec une source de rayons α dont on trace le spectre intégral. Par extrapolation, on détermine la perte de comptage et, en appliquant la formule

$$N_0 = \frac{N}{1 - N\tau},$$

on en déduit la valeur de τ .

Spectre d'impulsions de sortie. — En principe, les signaux de bascule du discriminateur ont tous la même

taille. En fait, il n'en est pas rigoureusement ainsi, le processus de bascule dépendant de la hauteur de l'impulsion au-dessus du seuil de discrimination.

On envoie, sur l'entrée du discriminateur, les impulsions fournies par le photomultiplicateur, mis dans les conditions de l'expérience (ZnS + α du polonium), et l'on détermine, à l'aide d'un second discriminateur, le spectre différentiel des impulsions fournies par le premier.

On constate que, pour les seuils de discrimination élevés (≥ 30 V), le spectre est bien un spectre de raie, mais qu'il y a une légère dispersion des hauteurs pour les seuils bas (2 et 10 V).

Seuil d'accrochage. — Soit v la différence de potentiel entre le curseur et le point haut du potentiomètre de seuil. On a

$$u_{g_2} - u_{g_1} = a + v,$$

a étant une constante, dépendant de la position du curseur du potentiomètre par l'intermédiaire duquel on polarise g_2 .

Lorsqu'on diminue v , l'entrée du discriminateur n'étant pas connectée, on peut trouver une valeur v_0 du seuil pour laquelle la bascule fonctionne en oscillateur générateur de signaux carrés. Nous désignerons cette valeur v_0 par le terme seuil d'autooscillation ou seuil d'accrochage.

K. I. Roulston [10] conseille d'ajuster a de telle façon que l'accrochage se produise pour $v_0 = 0$, ce qui simplifie les mesures. Si, toutefois l'on fait ainsi, et que, au cours du temps, a augmente de Δa , le seuil d'accrochage passe de 0 à $-\Delta a$, quantité qu'on ne peut atteindre expérimentalement et le seuil v , lu sur le voltmètre correspond, en fait, à des impulsions de hauteur $v + \Delta a$.

Lorsque le discriminateur est réalisé avec deux pentodes (6 AC 7 par exemple), comme dans le montage original de K. I. Roulston, la quantité a est très sensible aux variations de courant de chauffage et au vieillissement des tubes. Il est fréquent que ses variations journalières atteignent 1 à 2 V.

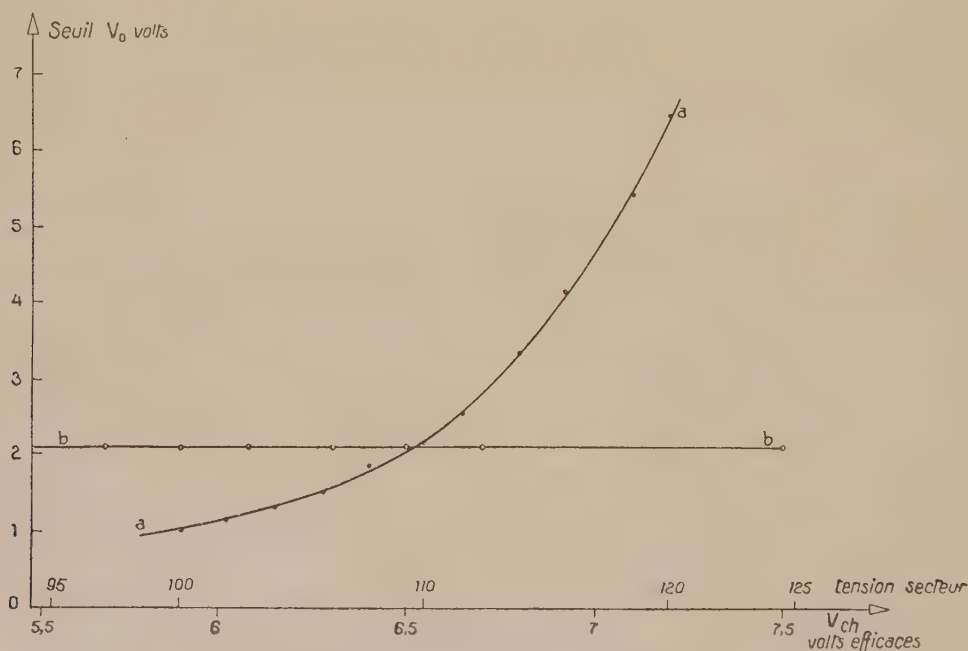


Fig. 5. — Influence de la tension de chauffage sur le seuil d'accrochage : a. des 6 AC 7; b. d'une EFF 51.

Nous avons apporté un premier remède à cet état de chose en conservant à v_0 une valeur finie, de l'ordre de 2 V. Dans ces conditions, la hauteur u des impulsions comptées se relie au seuil de discrimination v par

$$u = v - v_0.$$

Stabilisation du seuil. — On peut définir le seuil d'accrochage avec une dérive dans le temps beaucoup plus faible en éliminant les variations de la tension de chauffage. Nous avons constaté, en effet, qu'on pouvait attribuer à cette dernière la plus grande partie des variations de v_0 (fig. 5). Or, dans notre installation, la tension

de chauffage n'est pas stabilisée. Il est d'ailleurs difficile de stabiliser une tension de 6 V, devant débiter plusieurs ampères; une batterie d'accumulateurs ne constitue pas, d'autre part, une solution idéale.

Nous avons donc cherché à compenser la dérive en utilisant une lampe double, de telle sorte que les variations d'état du filament agissent de la même façon sur g_1 et sur g_2 . Le tube EFF 51 convient parfaitement pour ce faire, et la figure 5 montre que le seuil d'accrochage n'est plus affecté par les variations de la tension de chauffage. La figure 6 fait apparaître les variations de ce seuil sur une longue période, pour un discriminateur nouvellement construit et utilisant un tube neuf. Après une décroissance lente pendant le premier mois, v_0 reste constant jusqu'à mise hors service du tube (soit environ 2 à 3 000 h de fonctionnement continu).

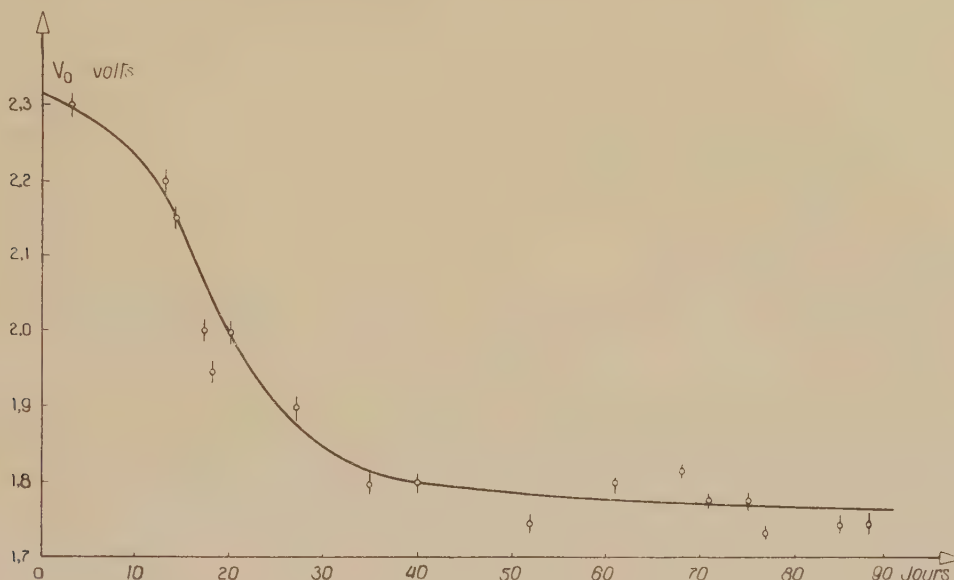


Fig. 6. — Évolution du seuil d'accrochage en fonction du vieillissement de la double pentode EFF 51.

Cette propriété du tube EFF 51 pour la stabilisation des seuils de discrimination a été mise en évidence également par R. Wahl [13] et W. L. Buys [14].

Il est nécessaire que les éléments du pont de polarisation commun aux deux grilles n'introduisent pas de nouvelles causes d'instabilité. On utilisera donc des potentiomètres bobinés et des résistances à couche. D'autre part, le voltmètre de contrôle de seuil devra avoir une résistance interne aussi grande que possible, pour que la commutation des différentes sensibilités ne modifie pas le potentiel de g_1 . Nous avons utilisé un voltmètre A. O. I. P., à 20 000 $\Omega \cdot V^{-1}$ dont la plus grande sensibilité correspond à 3 V pour 150 divisions.

Enfin, on facilitera la recherche d'un seuil donné en remplaçant le potentiomètre dit de seuil (50 k Ω bobiné) par un ensemble contacteur de gammes (six résistances de 10 k Ω à couche) et potentiomètre vernier (20 k Ω bobiné), le potentiomètre étant, pour chaque gamme, mis en parallèle sur deux résistances, de telle sorte que la résistance de l'ensemble soit constante et égale à 50 k Ω .

Dans ces conditions, la course totale du potentiomètre ne couvre que le cinquième de la latitude de seuil, ce qui facilite grandement les réglages et les rend plus facilement reproductibles.

Linéarité. — On vérifie la linéarité de l'ensemble déphaseuse-discriminateur en envoyant des impulsions standard, de taille connue, à l'aide d'un générateur de signaux carrés. On peut prendre de très grandes impulsions (100 V) qu'on divise par un montage potentiométrique, constitué d'une boîte à décades. On vérifie ainsi que les seuils de discrimination successifs, après soustraction du seuil d'accrochage, sont en progression arithmétique lorsqu'on fait défiler les différentes positions de la boîte de résistances. Cette vérification se fait avec une précision de 2 %, qui est l'ordre de grandeur de l'erreur expérimentale. Si l'on connaît la hauteur absolue des signaux envoyés, on en déduit également le gain de la déphaseuse d'entrée; dans notre cas

$$G = 0,785.$$

La valeur du gain en basse fréquence du montage est

$$G_0 = 0,930$$

d'après la formule (2.10), p. 11.

2.3.3. ALIMENTATION STABILISÉE.

La tension continue de $+250$ V utilisée pour la polarisation des anodes et les divers ponts doit être stabilisée vis-à-vis :

- des variations de la tension secteur;
- des variations du courant débité.

Nous avons vu que, grâce à leur forte contre-réaction de cathode, les déphaseuses étaient peu sensibles aux conditions de fonctionnement et ne nécessitaient pas de précautions spéciales pour la tension d'alimentation.

Il n'en est pas de même si l'on veut que le discriminateur soit stable, notamment pour les seuils faibles. Toutefois, le coefficient de stabilisation ne doit pas être aussi élevé que si l'on utilisait un amplificateur et l'alimentation peut être assez simple (fig. 1).

Le schéma de celle que nous avons utilisée est dû à R. Génin [11]. Le problème est ainsi posé : obtenir, avec une impédance interne aussi faible que possible, une tension de ± 250 V, pouvant débiter 50 mA (double de la consommation normale du discriminateur et du circuit d'entrée).

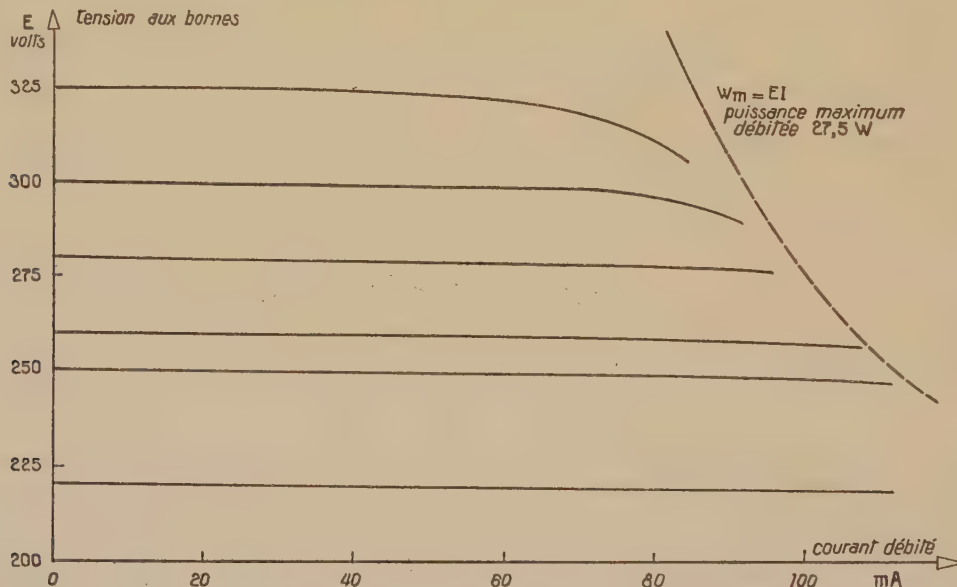


Fig. 7. — Caractéristiques de débit de l'alimentation stabilisée.

Le principe est le suivant : une fraction k de la tension de sortie est comparée avec une tension de référence E_0 , fournie par un tube à gaz 85 A 1. La différence $kE - E_0$ est amplifiée par un amplificateur à courant continu (afin d'éliminer les variations lentes du secteur) et changée de signe pour commander la grille d'une triode, montée en cathode-follower, dont la tension d'anode est fournie par un ensemble classique transformateur-valve-filtre, de résistance interne R .

L'amplificateur est réduit à une pentode 6 AC 7 et le cathode-follower (appelé parfois dans ce cas rhéostat électronique), constitué de deux triodes 6 B 4, en parallèle pour fournir le débit demandé, cette solution étant plus économique que l'emploi d'un seul tube 6 AS 7.

On peut calculer le coefficient de stabilisation S et l'impédance interne Z d'une telle alimentation stabilisée [11].

On obtient, avec les éléments utilisés pour le montage

$$S = 54,$$

$$Z = 20 \Omega.$$

C'est sensiblement la valeur que donnent les caractéristiques de débit de l'alimentation (fig. 7). Nous verrons ultérieurement un autre montage ayant des performances meilleures (chap. VI).

Signalons que cette alimentation fonctionne depuis décembre 1951 et le discriminateur, tel qu'il a été décrit, depuis mars 1954 (circuit bascule constitué d'un tube EFF 51), le modèle précédent, avec deux tubes 6 AC 7 ayant été utilisé de décembre 1951 à mars 1954.

CHAPITRE III.

ÉTUDE DE LA FLUORESCENCE D'UN ÉCRAN DE SULFURE DE ZINC EXCITÉ PAR DES PARTICULES α .

Dans ce chapitre, nous nous proposons de déterminer la loi de décroissance avec le temps de l'intensité lumineuse et la durée des scintillations produites dans un écran de sulfure de zinc activé à l'argent et contenant des traces de nickel, par des particules α isolées.

La méthode que nous avons utilisée est assez indirecte. Elle consiste à étudier la déformation des spectres intégraux — caractérisés par la hauteur moyenne d'impulsion — quand on fait varier la constante de temps du circuit de fuite du photomultiplicateur. Nous avons adopté ce mode expérimental, en dépit de ses inconvénients, pour vérifier, par la même occasion, l'étude théorique du fonctionnement du dernier étage du photomultiplicateur, faite par P. Leuba [16].

Une méthode beaucoup plus directe utilise un oscillographe cathodique à balayage rapide et éventuellement, à amplificateur à très large bande passante (Dumont 294 A, Tektronix 517). Les impulsions étudiées sont simplement envoyées sur la paire de plaques verticales, après amplification si besoin est, et leur trace sur l'écran est photographiée. Si l'impulsion est retardée par rapport au déclenchement du balayage, on observe sa montée et sa décroissance et il est possible de déterminer l'expression analytique qui rend le mieux compte des phénomènes observés [17], [18].

3.1. Résultat de la théorie de P. Leuba [16].

Tenant compte des dispositions de construction du photomultiplicateur et de ses conditions de fonctionnement, on peut, en appliquant le principe de conservation de l'électricité, obtenir une relation qui fait dépendre la variation de potentiel de l'électrode collectrice :

a. du déplacement des charges d'espace entre cette dernière et la dynode la précédant, sous l'action du champ électrostatique;

b. de l'écoulement vers la masse des charges portées par l'électrode collectrice, suivant la loi de décharge d'un condensateur dans une résistance.

Le problème est entièrement déterminé si l'on joint à cette relation les équations de dynamique des charges et si l'on tient compte des conditions aux limites et des conditions initiales.

Dans le cas du photomultiplicateur EMI 5311, l'électrode collectrice et la dynode peuvent être assimilées aux armatures d'un condensateur C, planes, parallèles et dont l'écartement est négligeable en regard de leurs dimensions autres que l'épaisseur. On montre alors que l'énergie dissipée par l'appareil, par radiation ou réaction magnétique, est toujours négligeable et que la variation du potentiel, u , de l'électrode collectrice est donnée avec une bonne approximation par la résolution de l'équation

$$(3.1) \quad \frac{du}{dt} + \frac{u}{RC} = \frac{q(t)}{C}, \quad \text{avec } u = 0 \quad \text{pour } t = 0.$$

$q(t) dt$ étant la somme des charges qui quittent la dernière dynode en direction de l'électrode collectrice entre les instants t et $t + dt$, avec $q(t) = 0$ hors de l'intervalle $(0, T)$.

Pour une excitation lumineuse suffisamment longue vis-à-vis du temps de transit des électrons (ordre de grandeur 2.10^{-9} s), $q(t)$ est assimilable à la variation d'intensité de cette excitation. Nous admettrons que c'est le cas ici. L'équation (3.1) suppose également que le potentiel de l'électrode collectrice n'est jamais susceptible de devenir trop voisin de celui de la dynode la précédant.

Soit

$$Q(T) = \int_0^T q(t) dt$$

la charge totale recueillie sur l'électrode collectrice.

Dans le cas général

$$u = \alpha \frac{Q(T)}{C},$$

α dépendant de $\frac{RC}{T}$ et de la forme de $q(t)$, et tendant vers 1 quand $\frac{RC}{T} \rightarrow \infty$.

L'étude expérimentale de la fonction α fournit donc des renseignements à la fois sur T et sur la forme de $q(t)$. Soit u_M la valeur maximum de u , solution de (3.1). P. Leuba calcule les fonctions

$$\gamma = \frac{u_M\left(\frac{RC}{T}\right)}{u_M\left(\frac{RC}{T} = \infty\right)} \quad \text{et} \quad z = \log \gamma,$$

en fonction de $\log \frac{RC}{T}$ pour diverses formes de $q(t)$.

Nous nous limiterons aux deux cas suivants :

	$t < 0.$	$0 < t < T.$	$t > T.$
$q_3(t) \dots \dots \dots$	0	$e^{-\frac{2\pi t}{T}}$	$e^{-\frac{2\pi t}{T}}$
$q_4(t) \dots \dots \dots$	0	$\frac{1}{(1+At)^2}$	$\frac{1}{(1+At)^2}$

en raison de l'intérêt théorique qui s'attache à ces expressions [cf. (3.3)] (fig. 8). Pour la comparaison entre les résultats expérimentaux et les autres lois étudiées par P. Leuba, voir [18].

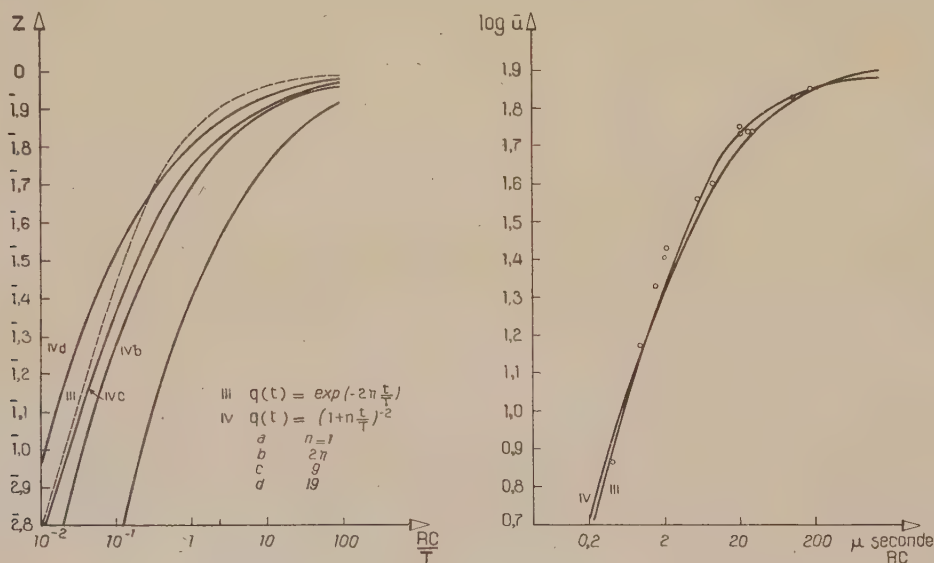


Fig. 8. — Variation de la hauteur des impulsions avec la constante de temps de sortie pour diverses lois d'arrivée des charges.

Fig. 9. — Variation expérimentale de la hauteur moyenne des impulsions avec la constante de temps de sortie.

3.2. Vérification expérimentale.

Expérimentalement, on agit sur RC en modifiant la résistance de fuite du photomultiplicateur, ρ . La variation de RC est liée à celle de ρ par la formule (2.7)

$$RC = \frac{\rho r}{\rho + r} \gamma,$$

r étant la résistance équivalente aux deux résistances de polarisation de la grille de commande du tube dépha-

seur, et γ la somme des capacités parasites du circuit d'entrée. Nous prendrons $\gamma = 20$ pF, compte tenu des résultats suivants :

- capacités parasites de l'électrode collectrice par rapport aux autres dynodes et au blindage du photomultiplicateur : 11 pF (mesurée);
- capacités parasites de la grille du tube d'entrée, par rapport à l'anode et à la cathode (fournies par le constructeur : 3,8 pF;
- capacité parasite de câblage (1 pF par centimètre de long) : 5 pF (estimée).

Pour chaque valeur de RC, on trace le spectre intégral des impulsions données par les scintillations de l'écran sous l'impact des particules émises par une préparation mince de polonium ($E_\alpha = 5,3$ MeV). Chaque spectre sera défini par la hauteur moyenne des impulsions $\bar{u}$, la hauteur u d'une impulsion étant liée au seuil de discrimination v par la relation

$$v = Gu,$$

G étant le gain de la déphaseuse ($G = 0,727$ pour l'appareillage utilisé dans ces expériences). Donc

$$u = 1,375 V.$$

Nous avons fait deux séries de mesures, en modifiant la valeur des résistances du pont de polarisation; ρ variait dans les limites suivantes :

$$\begin{array}{llll} 19,6 & k\Omega \leq \rho \leq 10,6 \text{ M}\Omega & \text{pour } r_1 = 2,7 \text{ M}\Omega, & r_2 = 5,1 \text{ M}\Omega, \quad \text{soit } r = 1,76 \text{ M}\Omega; \\ 0,1036 \text{ M}\Omega \leq \rho \leq 63,5 \text{ M}\Omega & & \text{pour } r_1 = 15,7 \text{ M}\Omega, & r_2 = 33,9 \text{ M}\Omega, \quad \text{soit } r = 10,73 \text{ M}\Omega. \end{array}$$

Les résultats expérimentaux sont les suivants :

	ρ .	R.	RC (μ s).	$\bar{u}$ (volts).
1 ^{re} série : $r = 1,76 \text{ M}\Omega$	10,6 M Ω	1,513 M Ω	30,26	59,9
	5,5	1,335	26,70	59,9
	3,45	1,167	23,34	58,2
	1,0975	676,2 k Ω	13,524	53,2
	557,6 k Ω	423,2	8,464	42,6
	327,6	276,4	5,528	38,9
	103,6	98	1,960	27,5
	78	74,8	1,496	23,4
	49,8	48,5	0,970	16,3
	19,6	19,4	0,388	7,9
2 ^e série : $r = 10,73 \text{ M}\Omega$	63,5 M Ω	9,18 M Ω	183,6	77,3
	10,6	5,32	106,4	72,3
	1,3	1,16	23,2	60,5
	0,1036	0,1027	2,054	29,0

Pour obtenir, à partir de ces résultats, les quantités inconnues $u\left(\frac{RC}{T} = \infty\right)$ et T, il est avantageux de tracer le graphique $\log \bar{u}$ en fonction de $\log RC$.

On amène ensuite en coïncidence les points expérimentaux portés dans le système de coordonnées ($\log RC, \log u$) avec l'une des courbes $z\left(\frac{RC}{T}\right)$, tracées dans le système de coordonnées $\left[\log \frac{RC}{T}, \log \frac{u_M\left(\frac{RC}{T}\right)}{u_M\left(\frac{RC}{T} = \infty\right)} \right]$, par des translations parallèles aux axes, d'amplitude $\log T, \log u(\infty)$ qui sont précisément les quantités à déterminer.

Nous avons tracé les courbes $z\left(\frac{RC}{T}\right)$ pour les deux formes d'impulsions définies ci-dessus, en donnant à A la valeur

$$A = \frac{9}{T},$$

de telle sorte que l'intensité soit pratiquement nulle hors de l'intervalle (0, T).

Si l'on essaie successivement d'amener en coïncidence les points expérimentaux avec l'une de ces courbes, on constate que, dans la limite de précision des mesures (*fig. 9*) :

a. la courbe qui convient le mieux est celle obtenue en admettant que la scintillation s'établit quasi instantanément en fonction du temps, puis décroît comme $\exp\left(-2\pi\frac{t}{T}\right)$;

b. la coïncidence s'obtient en amenant, par translations parallèles aux axes, le point de coordonnées

$$\begin{aligned}\log \bar{u} &= 1,875 \pm 0,005, \\ RC &= (18,4 \pm 0,5) \mu s\end{aligned}$$

du graphique expérimental avec le point de coordonnées

$$\begin{aligned}z &= 0, \\ \frac{RC}{T} &= 1\end{aligned}$$

du réseau des courbes z (*fig. 8*).

Il en résulte, pour les quantités inconnues, les valeurs

$$\begin{aligned}\log \bar{u}\left(\frac{RC}{T} = \infty\right) &= 1,875 \pm 0,005, \\ \bar{u}\left(\frac{RC}{T} = \infty\right) &= 75 \pm 1 V, \\ T &= 18,4 \pm 0,5 \mu s.\end{aligned}$$

Mais, en général, on met la loi de décroissance sous la forme

$$I = I_0 e^{-\frac{t}{\tau}}.$$

τ étant le temps de déclin [17] ou la constante de temps [4], qui se déduit aisément de T ,

$$\tau = \frac{T}{2\pi} = (2,9 \pm 0,1) \cdot 10^{-6} s.$$

Ce résultat est en accord avec celui indiqué par H. Kallmann [6] ($\tau < 10^{-8} s$).

Quant à la loi de décroissance, Detœuf, Blanc et Maignan [4] admettent que ZnS-Ag ne suit pas la loi exponentielle, sans donner de référence. Il semble qu'ils aient implicitement admis que le processus donnant naissance à la scintillation est le même lorsque l'excitation est produite par la lumière ultraviolette ou par les particules α . Or, dans le premier cas, la décroissance de l'intensité n'est pas exponentielle et la durée de scintillation fonction de l'intensité initiale [25]. Nous aurons l'occasion, au paragraphe suivant, de discuter le mécanisme de luminescence.

J. W. Strange [27] a étudié la décroissance des tungstates de calcium, cadmium et zinc et des sulfures suivants activés : ZnS (Cu), ZnS (Ag), ZnS-CdS, CaS (Ca), CaS (Ag) et CaS (Bi) excités par les rayons cathodiques. Toutes les décroissances observées peuvent être décomposées en sommes d'exponentielles. Les tungstates ont une composante longue de période $10 \mu s$ ou moins, les sulfures de $50 \mu s$ ou moins. Toutefois, pour des densités de rayons cathodiques de 300 à $400 \mu A/cm^2$, la composante courte prédomine ($\leq 1 \mu s$). La décroissance est observée à l'oscillographe pendant $1 ms$. On constate que cette décroissance rapide est suivie d'une décroissance lente, étudiée par Lewschin et que le nickel réduit la durée de la luminescence.

Dans les travaux récents, I. Broser et C. Reuben [18] obtiennent une loi de décroissance de la forme

$$I = \frac{I_0}{(1 + At)^2}, \quad \text{avec } A = 4,2 \cdot 10^6 s^{-1},$$

ce qui conduit à un temps de déclin beaucoup plus faible que celui que nous obtenons. La courbe IV (*fig. 8*) correspond à la valeur $A = 5,1 \cdot 10^5 s^{-1}$.

D. Smidt [20] trouve que l'intensité de luminescence I varie en fonction du temps, selon la loi

$$I = \frac{k}{ct + 1}$$

pour les particules α ou des électrons de 10 à $20 keV$. Dans ce résultat, k est proportionnel à la racine carrée de la

concentration en activateur et c , pour les particules α , fonction du parcours restant. Mais il ne donne aucune valeur numérique permettant de déterminer la durée des scintillations.

L. Bittman, M. Furst et H. Kallmann [39], procédant d'une façon un peu analogue à la nôtre trouvent que la courbe de décroissance d'une poudre de ZnS-Ag correspond à une somme d'exponentielles, la plus grande partie de la lumière étant émise en environ 1 μ s. Toutefois, ils admettent que, si la loi de décroissance est une exponentielle pure, la hauteur d'impulsion doit varier à peu près linéairement avec la résistance de fuite. Il est possible que le désaccord avec nos résultats provienne de cette approximation. D'autre part, il ne semble pas que leur scintillateur contienne du nickel.

Remarques. — 1° La théorie de P. Leuba fait intervenir la hauteur maximum des impulsions $u_M \left(\frac{RC}{T} \right)$. Cette quantité se détermine aisément si l'on fait un enregistrement photographique des impulsions, sur un écran d'oscillographe, mais il n'en est pas de même lorsqu'on trace les spectres, intégraux ou différentiels, qui sont tangents à l'axe des seuils pour la hauteur maximum. Comme, au voisinage de u_M , le nombre d'impulsions détectées diminue lentement quand on augmente le seuil, la position de u_M est mal définie. Nous avons préféré utiliser $\bar{u}$, connu à quelques pour-cent près. Comme les spectres obtenus pour diverses valeurs de la tension entre dynodes se déduisent les uns des autres par affinité (voir chap. IV, § 4.3) $\bar{u}$ et u_M sont proportionnels, ce qui justifie la méthode employée ici.

2° Si l'on suppose que la loi de décroissance de la luminescence est de la forme

$$I = I_0 (1 + At)^{-2}$$

et qu'on prenne pour A l'expression

$$A = \frac{n}{T},$$

les courbes $z \left(\frac{RC}{T} \right)$ obtenues pour diverses valeurs du paramètre n sont de forme semblable et peuvent être amenées en superposition presque parfaite par translations parallèles aux axes.

Nous avons tracé les courbes correspondant aux valeurs :

$$\begin{aligned} IV a : & \quad n = 1; \\ IV b : & \quad n = 2\pi; \\ IV c : & \quad n = 9; \\ IV d : & \quad n = 19. \end{aligned}$$

Dans tous les cas, on obtient pour A :

$$A = 5.10^5 \text{ s}^{-1},$$

la valeur de $u_M \left(\frac{RC}{T} = \infty \right)$ variant seule avec n .

La forme de ces courbes ne dépendant que très peu de la valeur de n , et aucune ne rendant compte de façon satisfaisante des résultats expérimentaux, nous pouvons dire qu'aucune loi hyperbolique de la forme ci-dessus ne peut exprimer le comportement du scintillateur.

3° Les résultats numériques que nous donnons sont légèrement différents de ceux que nous avons récemment publiés [21]. Ceci résulte d'un nouveau tracé des spectres utilisés, entraînant une modification de v .

3.3. Mécanisme de la luminescence.

De nombreux travaux ont été publiés sur la luminescence d'écrans ou de monocristaux de sulfure de zinc en présence de divers activateurs. La question, voisine, de l'électroluminescence de ces substances, a également été très étudiée.

Les mécanismes que nous allons envisager ont été discutés par S. I. Wawilow [22] et N. F. Mott et R. W. Gurney [23] y consacrent un chapitre de leur livre *Electronic Processes in Ionic Crystals* (chap. VI : *Luminescence and the dissipation of the energy*).

Un écran de sulfure de zinc activé à l'argent émet une luminescence bleue, apparemment la même sous irradiation à la lumière de Wood et sous l'impact de particules α . A l'aide d'un spectrographe à prisme de fluorine, ouvert à $f/11$, nous avons essayé de déterminer le spectre d'émission pour ces deux modes d'excitation. Sous l'influence de la lumière de Wood, on obtient une bande d'émission assez large, encadrée par les raies du mercure 4 047 et 4 960 Å, donc de position analogue à celle donnée par [23] et due à J. T. Randall. Mais il nous a été impossible d'impressionner la plaque photographique avec le rayonnement émis sous l'impact des particules α .

du polonium, malgré un temps de pose de 8 jours. On sait toutefois que le spectre est presque le même pour l'excitation par la lumière ultraviolette et par les rayons cathodiques [24].

Avec un spectrographe ouvert à $f/4,5$ et des postes de 3 à 8 jours, W. Kutzner [25] trouve que le spectre d'émission de ZnS-Ag, excité par de fortes sources de polonium correspond à la superposition de pics gaussiens, centrés sur les longueurs d'onde ci-dessous :

Position du maximum.	Intensité relative par rapport à la bande verte.
444 mμ.....	0,46
478.....	0,14
520.....	1
562,5.....	0,50
593.....	0,30

Mais ces résultats ne peuvent être comparés aux précédents, en raison de la présence de 10 % de NaCl utilisé comme fondant dans le sulfure de zinc. D'autre part, la méthode de décomposition d'une courbe donnée en courbes de Gauss est très sujette à caution.

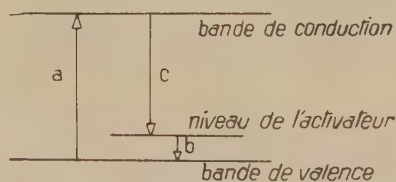


Fig. 10.

Le sulfure de zinc activé à l'argent émet sensiblement le même rayonnement bleu que le sulfure de zinc pur activé par un excès stoechiométrique de zinc. Il n'est donc pas possible de mettre directement en évidence, dans ce cas, le rôle joué par l'activateur. Lorsqu'on soumet un échantillon de ZnS-Cu au rayonnement α , la fluorescence est verte. Ainsi, la lumière est émise par les centres activateurs, bien que la proportion soit d'environ un atome de cuivre pour 10 000 molécules de ZnS. Mais l'énergie des particules incidentes est presque totalement absorbée par les ions du réseau parfait et non uniquement par les atomes étrangers au réseau. En dépit de cela, le rendement de luminescence est très haut. A la température ordinaire, jusqu'à 80 % de l'énergie de la particule est transformée en énergie lumineuse [26]. Ceci n'est possible que s'il existe un mécanisme à très haut rendement par lequel l'énergie est transférée de l'ion absorbant à l'atome activateur.

La particule α perd presque toute son énergie en produisant des électrons d'énergie inférieure ou égale à 500 eV, les plus rapides de ceux-ci donnant des électrons secondaires. La plus grande partie de l'énergie de la particule incidente est finalement utilisée à produire des électrons libres dans le cristal et à les élever dans la bande de conduction (flèche *a*, fig. 10). Après arrêt d'une particule, nous aurons donc un certain nombre d'électrons dans la bande de conduction et un nombre correspondant de lacunes dans la bande de valence. Supposons que lacunes et électrons soient mobiles. Si une lacune positive rencontre un atome activateur qui constitue un niveau électronique occupé au-dessus de la bande de valence, un électron descendra de ce niveau dans la bande de valence (flèche *b*, fig. 10) et l'état électronique du cristal sera exactement le même que si l'électron avait été éjecté d'un atome de l'activateur. Un des électrons qui ont été envoyés par la particule α dans la bande de conduction rencontrera la place vacante dans le niveau de l'activateur et, en y redescendant, émettra la radiation caractéristique de cet atome (flèche *c*, fig. 10).

Ce mécanisme est possible, que l'excitation du cristal se fasse par des particules matérielles ou par la lumière ultraviolette, pourvu que :

- 1° la lacune soit mobile dans la bande de valence;
- 2° un électron de l'activateur possède normalement une énergie supérieure à celle de la bande dans laquelle se déplace la lacune positive.

Supposons qu'il y ait N électrons par unité de volume dans la bande de conduction, et n niveaux vacants dans l'activateur, dont le niveau contient en outre q électrons. Il y aura dans la bande de valence P lacunes.

Soit a la probabilité de recombinaison, par unité de temps, d'un électron de la bande de conduction avec une lacune de la bande de valence, b la probabilité de capture d'un électron de la bande de conduction par un niveau de l'activateur, c la probabilité de capture d'un électron du niveau de l'activateur par une lacune de la bande de valence.

L'évolution du système est décrite par les trois équations différentielles

$$(3.2) \quad \begin{cases} -\frac{dN}{dt} = aNP + bNn, \\ \frac{dn}{dt} = -bNn + cqP, \\ \frac{dP}{dt} = -aNP - cqP. \end{cases}$$

Nous sommes obligés de faire quelques hypothèses pour pouvoir intégrer ces équations, le système (3.2) n'admettant pas de solutions simples sous la forme ci-dessus.

Nous supposons, pour commencer, que les électrons passent librement du niveau de l'activateur dans la bande de valence et que, par conséquent, il y a toujours des niveaux vacants dans l'activateur, en nombre n , que nous supposons constant. D'autre part, nous serons amenés ultérieurement à supposer

$$b \gg a,$$

ce qui est justifié physiquement par le fait que la luminescence due à l'activateur cache celle de la substance luminescente, ce qui est visible pour ZnS-Cu (vert), ZnS-Mn (jaune).

Si l'on pose

$$\frac{dn}{dt} = 0,$$

le système (3.2) se simplifie en

$$-\frac{dN}{dt} = aNP + bNn.$$

Mais $N = P + n$ (conservation de la charge), de telle sorte que

$$(3.3) \quad -\frac{dN}{dt} = N[aN + (b-a)n],$$

dont la solution sera

$$(3.4) \quad N = \frac{(b-a)n}{\left[a + \frac{(b-a)n}{N_0} \right] \exp(b-a)nt - a},$$

N_0 étant le nombre d'électrons envoyés dans la bande de conduction au temps $t = 0$.

Mais avec l'hypothèse précédente $b \gg a$, on obtient pour N l'expression simplifiée

$$(3.5) \quad N = N_0 \exp(-bnt).$$

En d'autres termes, la décroissance est régie par la vie moyenne des lacunes dans le niveau de l'activateur.

Ces résultats sont à rapprocher de ceux qu'obtiennent N. F. Mott et R. W. Gurney [23] et S. I. Wawilow [22], mais ces auteurs supposent qu'il y a normalement des places vacantes dans les niveaux de l'impureté et que, dans un tel cas, seul le processus de désexcitation par le niveau de l'impureté intervient. Ils obtiennent ainsi une équation différentielle un peu plus simple que (3.3), de la forme

$$\frac{dN}{dt} = bN(N + v),$$

v étant le nombre de places normalement inoccupées sur les niveaux de l'activateur et b ayant la même signification que ci-dessus, de telle sorte que la solution est

$$N = \frac{v}{\left(1 + \frac{v}{N_0} \right) \exp bv t - 1}.$$

Si nous reprenons la formule simplifiée (3.5), nous voyons que l'intensité lumineuse est

$$I = -\frac{dN}{dt} = bN_0 e^{-bnt}.$$

Ainsi, l'intensité lumineuse est proportionnelle :

- 1° au nombre d'électrons envoyés dans la bande de conduction, donc à l'énergie cédée au cristal;
- 2° au nombre de niveaux vacants dans l'activateur, c'est-à-dire à la concentration de ce dernier. Nous avons vérifié ce point avec des écrans ZnS-Ag contenant des concentrations différentes d'argent et constaté que la hauteur moyenne d'impulsions — dans les mêmes conditions d'excitation — variait du simple au double.

La composante de phosphorescence n'est pas observable, en régime d'impulsions, avec les constantes de temps que nous avons choisies.

Les phénomènes sont, d'ailleurs, beaucoup plus complexes, car l'on ajoute, au sulfure de zinc, outre l'activateur Ag, des traces de nickel dont le but est de créer des pièges électroniques. Les niveaux du piège sont supérieurs à ceux de l'activateur, de telle sorte qu'ils n'interviennent de façon appréciable qu'après la décroissance exponentielle, pour couper la composante longue (effet d'extinction, ou quenching effect de la littérature anglo-saxonne).

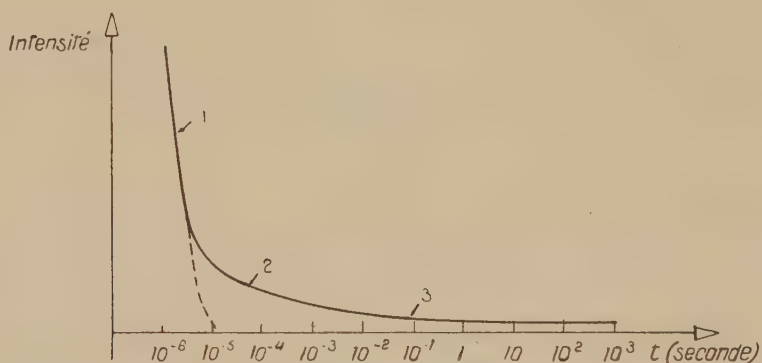


Fig. 11.

—— ZnS-Ag; ---- ZnS-Ag, Ni.

(Communication privée de J. F. Raffle, ce dernier admettant, toutefois, une loi en t^{-n} .)

On observe ainsi successivement (fig. 11) :

- 1° pour une très forte intensité, une décroissance exponentielle rapide, avec une période de l'ordre de la microseconde, indépendante de la température;
- 2° lorsque l'intensité diminue, une décroissance imposée par la loi bimoléculaire $\frac{dN}{dt} = aN^2$ [28], [29], avec une période inférieure à la milliseconde, ou de cet ordre [25];
- 3° la composante longue de phosphorescence, sensible à la température.

L'extinction par les pièges entre en compétition avec ces deux derniers processus, et l'allure du phénomène résultant de la superposition de ces effets est très sensible aux concentrations en argent et nickel, ainsi, sans doute, qu'au mode de préparation du sulfure, ce qui explique les divergences entre les divers auteurs, tant sur la loi de décroissance de la luminescence que sur sa durée.

En résumé, nous pouvons dire qu'il existe de solides raisons théoriques pour que le début de la décroissance de la luminescence excitée dans le sulfure de zinc activé à l'argent, suive une loi exponentielle, qu'une telle loi rend parfaitement compte des résultats expérimentaux et que ceux-ci conduisent à admettre un temps de déclin τ , défini par

$$I = I_0 e^{-\frac{t}{\tau}}$$

voisin de 3 μ s.

En outre, la théorie de P. Leuba sur le fonctionnement du dernier étage d'un photomultiplicateur nous permet de calculer l'atténuation subie par les impulsions du fait du circuit de fuite.

CHAPITRE IV.

LINÉARITÉ DU PHOTOMULTIPLICATEUR. RELATION ENTRE LA RÉPONSE DU PHOTOMULTIPLICATEUR ET LE PARCOURS DES PARTICULES α DANS L'ÉCRAN.

4.1. Dispositif expérimental.

Deux méthodes ont été successivement employées pour faire varier le parcours des particules α dans l'écran, R.

Dans une première série d'expériences, nous avons fait varier R en modifiant la distance source-écran, dans l'air, à la pression atmosphérique.

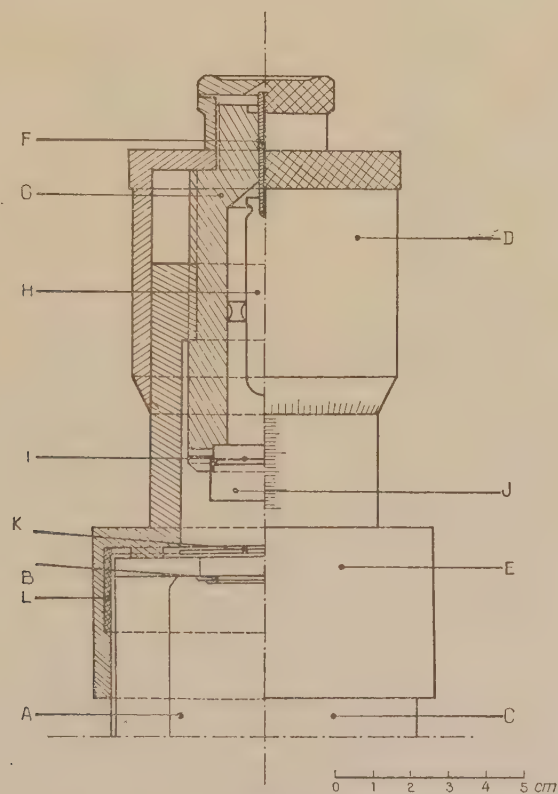


Fig. 12.

Nomenclature : A, photomultiplicateur EMI 5311; B, photocathode; C, boîtier du photomultiplicateur; D, chapeau-tambour diviseur; E, base écrou, assurant le centrage; F, chicane optique et rentrée d'air; G, vis micrométrique porte-source; H, tube à desséchant (CaCl_2); I, source et lamelle de fixation; J, canaliseur (*non coupé*); K, écran et porte-écran; L, feutre d'étanchéité optique.

La source est placée derrière un canaliseur en laiton, de 4,01 mm d'épaisseur, constitué de 260 trous de 0,5 mm de diamètre, parallèles et disposés aux sommets d'un réseau hexagonal de 0,7 mm de côté. De la sorte, les

particules α sortant par un trou sont inclinées sur l'axe d'un angle inférieur ou égal à $7^{\circ}7'$ et l'erreur maximum sur le parcours qui en résulte est de 8 ‰ .

Ce canaliseur est fixé rigidement à une vis micrométrique, solidaire d'un tambour divisé permettant de déterminer R à $0,01 \text{ mm}$ près (*fig. 12*). Le corps de l'appareil forme écrou pour la vis micrométrique; sur une génératrice, il porte une division en millimètres. L'ensemble constitue un carter étanche à la lumière, qu'on ajuste sur le boîtier du photomultiplicateur, de telle sorte que l'écran soit parallèle à la photocathode, et coaxial avec elle. Une ouverture en chicane permet de réaliser instantanément l'équilibre de pression avec l'extérieur, lors des mouvements de la source. En cours de mesure, on note la pression atmosphérique et la température pour ramener la densité de l'air aux conditions normales (15° C -760 mm de mercure). De la sorte, le parcours restant peut être ajusté entre 0 et $34,54 \text{ mm}$ d'air.

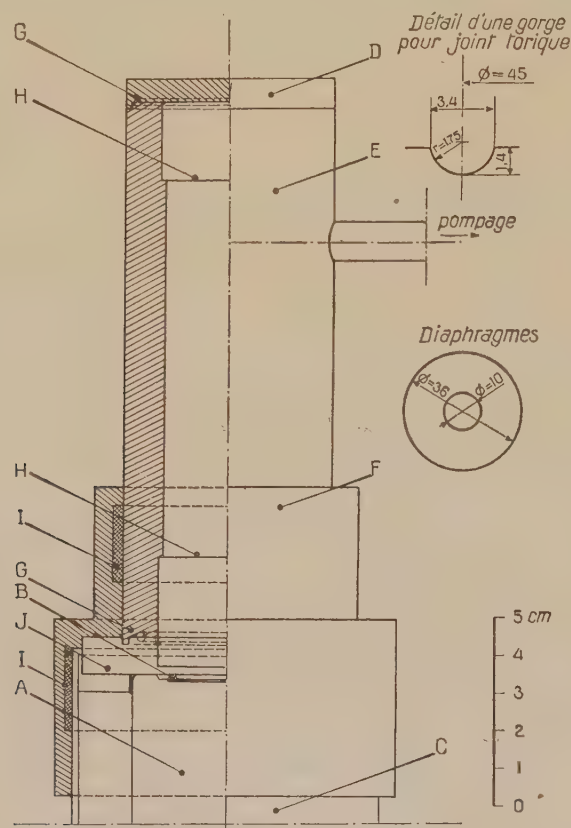


Fig. 13.

Nomenclature : A, photomultiplicateur EMI 5311; B, photocathode; C, boîtier du photomultiplicateur; D, couvercle porte-source; E, corps cylindrique; F, manchon de centrage; G, gorge pour joint torique 42×3 ; H, diaphragme (épaisseur, $0,5 \text{ mm}$); I, feutre d'étanchéité optique; J, base porte-écran (plexiglass poli).

Ce dispositif s'est révélé très satisfaisant pour étudier la relation entre le parcours restant et la hauteur moyenne des impulsions, mais non pour apprécier l'efficacité de l'écran. En effet, lorsqu'on modifie la distance source-écran, on fait varier l'aire de la portion d'écran excitée par les particules émises par un trou du canaliseur; cette aire croît avec la distance source-écran, recouvre partiellement les aires découvertes par les canaux voisins et l'on ne peut pas considérer, dans ces conditions, que la densité en particules incidentes est uniforme.

La seconde série de mesures a été faite avec une géométrie fixe. Source et écran sont disposés aux extrémités d'une chambre cylindrique, de 150 mm de longueur et de 35 mm de diamètre intérieur. Ce cylindre est fermé, à son extrémité inférieure par une lame de plexiglas (*fig. 13*). L'écran est logé dans une cuvette de 30 mm de diamètre et de 7 mm de profondeur; le fond de la cuvette et la portion en regard de la face inférieure étant optiquement polis. La lame de plexiglas peut s'engager dans le boîtier métallique du photomultiplicateur et descendre au contact de la photocathode. L'étanchéité à la lumière est assurée par une pièce annulaire, qui, lorsqu'elle est emmanchée sur le boîtier, fait coïncider l'axe de la photocathode et de la chambre.

Le faisceau de particules α est délimité par deux diaphragmes circulaires, de 10 mm de diamètre, et situés à 20 et 120 mm de la source. On fait varier R en modifiant la pression dans la chambre. L'installation est, pour ce faire, complétée par divers appareils : pompe à palettes, volant de vide constitué par un ballon de 2 000 cm³, contenant un peu de desséchant (P₂O₅), un capillaire permettant les rentrées d'air ménagées et un manomètre à mercure. L'erreur sur R due à l'angle solide sous-tendu par les diaphragmes est inférieure à 4 ‰.

4.2. Principe des mesures.

On détermine directement le parcours restant des particules, pour chacun des deux dispositifs utilisés. Pour le premier :

$$R_1 = 38,48 - d \frac{p}{60} \times \frac{288}{273 + t}.$$

Pour le second :

$$R_2 = 38,48 - L \frac{p}{760} \times \frac{288}{273 + t},$$

R₁ et R₂ sont exprimés en millimètres d'air normal; p et t sont la pression, en millimètres de mercure et la température, en degrés centigrades, au moment de l'expérience; d est la distance source-écran, lue au micromètre. Nous avons dit que l'erreur sur d est de l'ordre de 0,01 mm. L'erreur sur p, dans ces mesures, est de l'ordre de 1 mm de mercure.

Dans le second cas, la distance source-écran est constante :

$$L = 150 \pm 0,2 \text{ mm},$$

p est mesuré au cathétomètre, en visant les deux niveaux du manomètre à mercure. Chaque visée est faite à 0,05 mm près.

Dans les deux cas, t est repéré à 0,5° C près. Par suite

$$\begin{aligned} \frac{\Delta R_1}{38,48 - R_1} &\leq \frac{0,01}{d} + 3 \cdot 10^{-3}, \\ \frac{\Delta R_2}{38,48 - R_2} &\leq \frac{0,1}{p} + 4 \cdot 10^{-3}. \end{aligned}$$

Les deux méthodes donnent des précisions de même ordre.

La réponse relative nous est fournie par deux sources de données :

- les spectres intégraux;
- les mesures électrométriques du courant de fuite.

On peut montrer que ces deux méthodes conduisent aux mêmes résultats. Soit, en effet, N(u) le nombre par seconde d'impulsions de taille supérieure à u. L'aire du spectre intégral, pour des particules de parcours restant R, est

$$A(R) = \int_0^\infty N(u) du$$

et la hauteur moyenne d'impulsion, dans ces conditions

$$(4.1) \quad S(R) = u = \frac{1}{N_0(R)} \int_0^\infty N(u) du,$$

N₀(R) étant le nombre total de particules détectées, obtenu en extrapolant le spectre intégral pour u → 0.

Dans le cas de la mesure du courant de fuite, on intègre les impulsions par un circuit RC (R = 1 MΩ, C = 16 μF) et l'on mesure la chute ohmique de tension aux bornes de R par un électromètre à quadrants, en montage hétérostatique symétrique. Soit I le courant de fuite et n(u) du le nombre par seconde, d'impulsions de taille comprise entre u et u + du. La quantité d'électricité apportée par seconde à l'électrode collectrice par ces impulsions est

$$(4.2) \quad Q = C \int_0^\infty n(u) u du.$$

Cette quantité est numériquement égale à I.

Mais

$$n(u) du = N(u) - N(u + du) = - \frac{dN(u)}{du} du.$$

Donc

$$(4.3) \quad I = -C \int_0^\infty u \frac{dN(u)}{du} du = C [u N(u)]_0^\infty + C \int_0^\infty N(u) du = C N_0(R) S(R),$$

car le terme intégré est, de toute évidence, nul. On définira la quantité

$$(4.4) \quad S' = \frac{I}{N_0} = CS(R),$$

$S(R)$ sera appelé réponse relative. Elle est équivalente, au point de vue dimensions, à une différence de potentiel. S' a les dimensions d'une charge. On pourra l'exprimer en coulombs par particule.

4.3. Influence de la différence de potentiel entre dynodes sur la linéarité et le gain du photomultiplicateur.

A une excitation lumineuse donnée, correspond un spectre d'impulsions recueillies sur l'électrode collectrice. Lorsque la moyenne des hauteurs maxima de ces impulsions est proportionnelle au nombre total de photons émis par la scintillation, nous dirons que le photomultiplicateur est linéaire. Dans ces conditions, le rapport des moyennes des hauteurs d'impulsions relatives à deux excitations lumineuses est indépendant de la tension appliquée entre dynodes. Nous nous proposons en premier lieu d'établir cette dernière proposition.

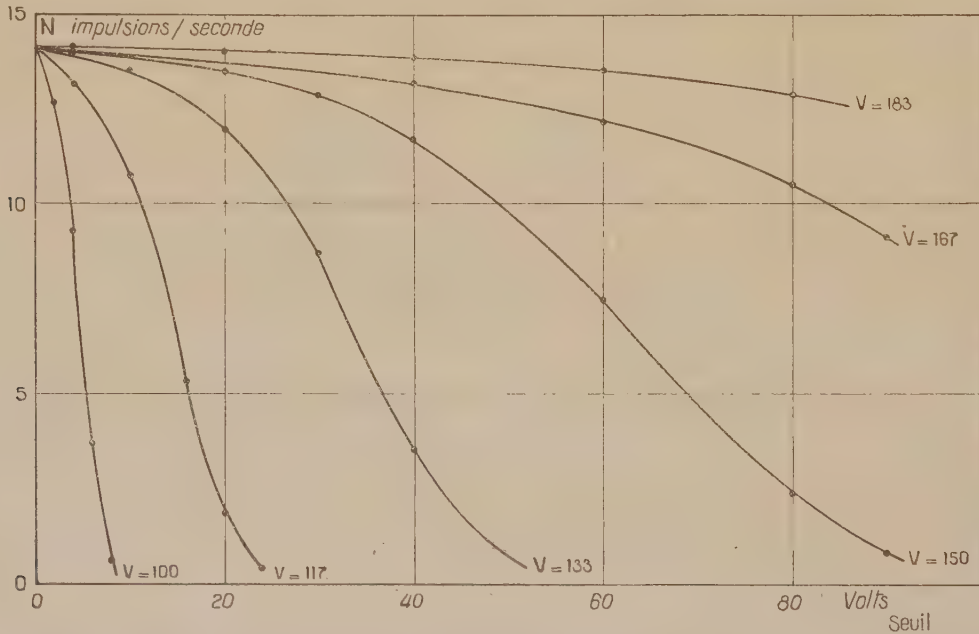


Fig. 14. — Famille de spectres intégraux obtenus à R constant pour diverses valeurs de la tension entre dynodes.

Nous conviendrons de repérer l'excitation lumineuse par le parcours restant de la particule α dans l'écran. Ceci implique que la géométrie reste fixe. C'est pourquoi nous utiliserons les résultats obtenus avec le second dispositif expérimental (voir p. 26).

La réponse relative est déterminée par les deux méthodes que nous venons de citer (spectre intégral et courant de fuite) et les mesures sont répétées pour différentes tensions entre dynodes, v ; dans nos expériences, nous avons fait varier v de 83 à 183 V pour la mesure du courant de fuite et de 100 à 183 V pour le tracé des spectres.

Considérons les spectres intégraux obtenus pour un parcours restant donné, R, et pour deux valeurs, v_1 et v_2 , de la tension entre dynodes (fig. 14). On constate expérimentalement que ces spectres fournissent la même

valeur N_0 à l'origine, quand le seuil de discrimination u tend vers zéro, puis, que pour une valeur N donnée, les tailles des impulsions individuelles sont des fonctions croissantes de v .

Nous pouvons définir le gain relatif du photomultiplicateur comme étant le rapport des deux seuils correspondant à une même valeur de N . Soit g ce rapport et $G(v)$ le gain absolu pour la tension v , c'est-à-dire le rapport du nombre d'électrons atteignant l'électrode collectrice au nombre de photoélectrons. Nous noterons

$$(4.5) \quad g_{v_1}(v_2) = \frac{G(v_2)}{G(v_1)} = \frac{u(v_2)}{u(v_1)}.$$

Si, pour un parcours restant donné — c'est-à-dire pour une excitation lumineuse donnée — le photomultiplicateur est linéaire, les spectres intégraux correspondant à v_1 et v_2 — pour ce même parcours restant — doivent se déduire l'un de l'autre par affinité orthogonale. Si, au contraire, pour une certaine hauteur d'impulsion, il apparaît une saturation, la taille mesurée des impulsions, $u(v_2)$ sera inférieure à celle qu'on attendrait, $gu(v_1)$.

Pour faire cette vérification, nous avons pris pour spectres de référence ceux obtenus pour $v_1 = 133$ V et coupé les spectres intégraux par les horizontales $N = \frac{1}{4}N_0$, $N = \frac{1}{2}N_0$ et $N = \frac{3}{4}N_0$. Les résultats sont consignés dans le tableau suivant. Nous avons défini un écart probable pour éliminer quelques mesures aberrantes, visiblement dues au tracé des spectres. Cet écart a été choisi tel qu'il détermine, de part et d'autre de la valeur moyenne, une bande contenant les deux tiers des résultats expérimentaux.

v_2 (volts/étage).	Nombre de mesures.	Gain relatif (par rapport à $v_1 = 133$ V).			
		valeur moyenne.	écart maximum.	valeur probable.	écart probable.
100.....	15	0,165	13 %	0,165	11 %
117.....	12	0,451	7	0,431	3,5
133.....	—	1,000	—	1,000	—
150.....	10	1,86	4	1,87	0,7
167.....	7	3,24	3	3,29	2
183.....	5	4,71	2	4,75	0,4

On ne constate pas de déviation systématique autour des valeurs moyennes, ce qui conduit à éliminer une déformation des spectres due à un défaut de linéarité, même pour des impulsions individuelles de grande taille, puisque pour une différence de potentiel entre dynodes supérieures à 130 V, on obtient aisément des impulsions correspondant à $u = 80$ V (soit une taille réelle de l'impulsion de l'ordre de 110 V).

Seuls les spectres obtenus pour $v = 100$ V présentent des écarts assez grands. Ils correspondent à des seuils faibles (inférieurs à 16 V), entraînant, dans leur tracé, une erreur relative plus élevée.

Il reviendrait au même de calculer les rapports des courants de fuite correspondant aux différentes excitations. On peut constater, aux erreurs de mesure près, qu'on a bien

$$(4.6) \quad g_{v_1}(v_2) = \frac{I_{v_2}(R)}{I_{v_1}(R)}.$$

On peut tracer la courbe $g = g_{v_1}(v_2)$ du gain relatif en fonction de la tension entre dynodes (fig. 15). Nous n'avons pas pu déterminer le gain absolu du photomultiplicateur, ce qui exige une installation de photométrie particulière. On constate toutefois que la courbe de gain relatif peut être amenée en coïncidence de façon très satisfaisante avec celle donnée par J. B. Birks [30] pour ce genre de photomultiplicateur. Par comparaison des ordonnées, nous en déduisons que le photomultiplicateur EMI 5311 utilisé possède pour 133 V par étage, un gain absolu

$$G(133) = 5 \cdot 10^6.$$

Nous pouvons donc dire :

1° le rapport entre les moyennes des hauteurs d'impulsions relatives à deux excitations différentes est indépendant de la tension appliquée entre dynodes, dans tout le domaine exploré (83 à 183 V par étage), même pour des impulsions dont la hauteur s'approche de la différence de potentiel entre la dernière dynode et l'électrode collectrice. Ce résultat expérimental élargit les conditions de validité de l'équation (3.1), p. 17 (voir [16]).

Cette propriété est vérifiée à quelques centièmes près. En d'autres termes, la courbe de réponse du photomultiplicateur conserve la même forme, quelle que soit la tension appliquée.

2° Seuls les phénomènes provoqués par la présence de charges d'espace importantes pourraient entraîner un manque de linéarité dans la réponse du photomultiplicateur. Or, cette densité de charge est certainement

très variable avec la tension appliquée (pour une excitation donnée, le nombre de photoélectrons est constant, mais le facteur de multiplication des dynodes croît avec la tension). N'ayant pas constaté de déformation des spectres en variant la tension entre dynodes, nous en concluons que, dans les conditions indiquées, la hauteur d'impulsion fournie par le multiplicateur est proportionnelle à l'excitation lumineuse reçue par la photocathode.

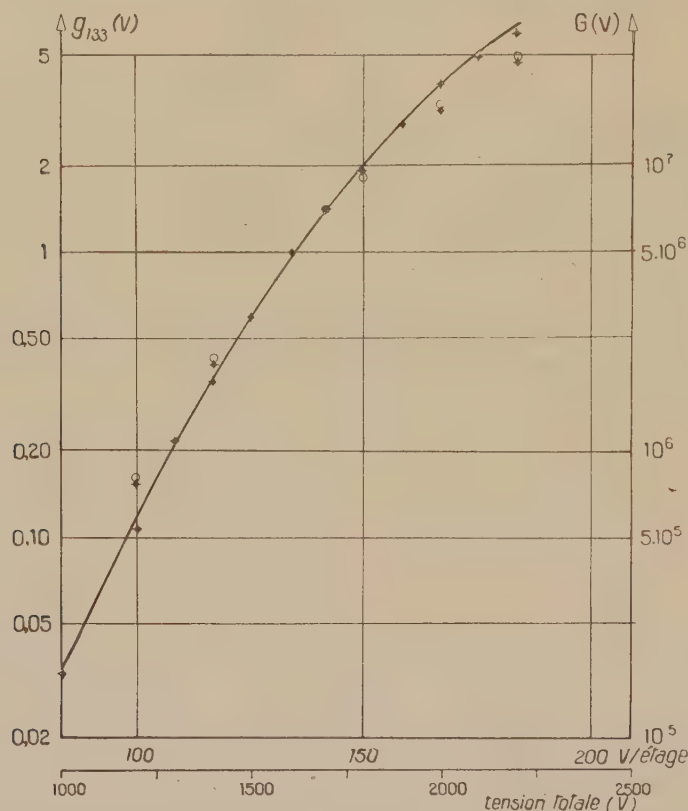


Fig. 15. — Variation du gain du photomultiplicateur avec la différence de potentiel entre dynodes.

Échelle de gauche : gain relatif, $g_{133}(v) = \frac{G(v)}{G(133)}$.

Échelle de droite et courbe : gain absolu $G(v)$ et sa variation avec v , selon J. B. Birks [30] pour les photomultiplicateurs EMI, type 5311.

Cercles : résultats déduits des spectres intégraux;

Croix : » » » mesures électrométriques.

En outre, nous avons cherché à mettre en évidence la saturation au niveau de la photocathode, en utilisant comme scintillateur, soit un écran de 30 mm de diamètre, soit le même écran recouvert d'un disque opaque aux α et percé d'un trou de 2 mm de diamètre, soit un fragment du même écran, de 2 mm de diamètre. Avec une haute tension de 1500 V (133 V par étage) nous avons obtenu deux spectres de forme semblable, le petit écran fournissant des impulsions moyennes légèrement plus faibles.

Pour clore cette discussion nous devons signaler que la zone de fonctionnement linéaire d'un photomultiplicateur est liée à la durée du signal lumineux recueilli par la photocathode.

En effet, les dynodes sont constituées par un support métallique, ne participant pas à l'émission, recouvert d'une couche très mince d'antimoine de césium. La couche émissive a une très grande résistivité (de l'ordre de $10^{11} \Omega\text{-cm}$), de telle sorte que, si une charge q quitte la dynode en un temps très bref, elle crée à sa surface une charge positive qui provoque un champ antagoniste au champ accélérateur. Ce champ décroît exponentiellement avec le temps, au fur et à mesure que la couche émissive se recharge en électrons par l'intermédiaire du support et du pont de polarisation.

Dans le cas du sulfure de zinc, la durée d'une scintillation est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-8}$ s et la charge maximum recueillie sur l'électrode collectrice $2,5 \cdot 10^{-8}$ Cb par particule. Il en résulte une intensité moyenne, au niveau de la dernière dynode :

$$i_m = 1,2 \text{ mA},$$

Si l'on ne veut pas dépasser cette intensité avec un cristal 100 ou 1000 fois plus rapide (respectivement NaI et anthracène), il faut s'astreindre à ne recueillir sur l'électrode collectrice que des charges 100 ou 1000 fois moindres, c'est-à-dire pour une même valeur $\frac{RC}{T}$ du circuit de fuite, des impulsions de tension de l'ordre de 1 ou 0,1 V. Ces ordres de grandeur sont ceux généralement admis par les auteurs utilisant ces scintillateurs comme correspondant à un fonctionnement linéaire du photomultiplicateur. On se reportera, par exemple, à l'étude critique de J. F. Raffle et E. J. Robbins [31].

4.4. Variation de l'efficacité de l'écran avec le parcours restant des particules α .

Soit N_0 le nombre total de particules détectées par seconde, obtenu par extrapolation du spectre intégral pour le seuil nul. On constate que, à parcours restant égal, cette quantité est indépendante de la tension appliquée entre dynodes, même lorsque cette tension varie dans de très larges limites (voir § 4.3 et fig. 14). Par contre N_0 varie quand on modifie le parcours restant R des particules dans l'écran.

Dans ces conditions, il semble logique d'admettre que la variation de N_0 avec R est due à la structure hétérogène de l'écran, celui-ci étant constitué d'une dispersion de grains fins de ZnS (diamètre moyen, 11 μ), additionné de traces d'argent et de nickel, dans du nitrate de cellulose, à raison de 10 mg/cm² et, par suite, que cette variation, traduisant la probabilité qu'a une particule α d'exciter un grain de ZnS est indépendante des conditions de travail du photomultiplicateur.

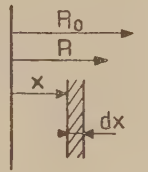


Fig. 16.

L'écran a une épaisseur suffisante pour arrêter toutes les particules (80 μ , et une densité superficielle, 14,4 mg/cm²).

Soit n_0 le nombre de particules α qui frappent l'écran par seconde et λ la probabilité pour une particule d'exciter un centre par unité de parcours.

Le nombre de particules ne donnant pas de scintillation pendant leur trajet de 0 à x est $n_0 \exp(-\lambda x)$. La probabilité, pour une particule de parcours R dans le nitrate de cellulose de s'arrêter après un trajet x , par suite des fluctuations de parcours, peut se représenter par la loi de Gauss

$$p(x) = \frac{1}{\alpha \sqrt{\pi}} \exp \left\{ - \left(\frac{x - R}{\alpha} \right)^2 \right\}$$

et, par suite, le nombre de particules ne donnant pas de scintillation dans la tranche comprise entre les trajets x et $x + dx$ (fig. 16) est

$$(4.7) \quad \frac{n_0}{\alpha \sqrt{\pi}} e^{-\lambda x} \exp \left\{ - \left(\frac{x - R}{\alpha} \right)^2 \right\} dx.$$

Donc, si l'on envoie n_0 particules par seconde, de parcours restant R , on en comptera n , tel que

$$(4.8) \quad n = n_0 \left\{ 1 - \frac{1}{\alpha \sqrt{\pi}} \int_0^\infty \exp \left[-\lambda x - \frac{(x - R)^2}{\alpha^2} \right] dx \right\},$$

l'intégration pouvant être étendue jusqu'à l'infini, puisque l'écran est, pour les particules α étudiées, infiniment épais. L'intégration de cette formule donne

$$(4.9) \quad n = n_0 \left\{ 1 - \exp \left[-\lambda \left(R - \frac{\lambda \alpha^2}{4} \right) \right] \right\},$$

que nous pouvons écrire, en première approximation

$$(4.10) \quad n = n_0 \{ 1 - \exp(-\lambda R) \}$$

car α est de l'ordre de 0,06 cm (I. Curie [32]).

En toute rigueur, nous aurions dû écrire, dans le calcul précédent, que λ était fonction de x en raison, d'une part de la variation possible de la densité en grains avec la cote, et, d'autre part, de la variation du pouvoir ionisant de la particule α le long de son parcours. Mais, pour intégrer la formule (4.8), on est amené à expliciter la fonction $\lambda(x)$. Nous avons pris

$$\lambda(x) = \lambda = \text{const.}$$

Dans la limite de précision des mesures, l'expérience confirme cette hypothèse simplificatrice.

Dans une première série d'expériences, nous avons utilisé le dispositif micrométrique, décrit au paragraphe 4.1. Les résultats ont été les suivants :

Parcours restant R (mm).	Nombre de particules détectées par seconde, $N_0(R)$.
2,90.....	34,8
15,20.....	42,2
9,5.....	51
17,2.....	58,4
24,1.....	62,8
29,95.....	65,6
34,35.....	68

La formule (4.10) n'est vérifiée que pour les grands parcours restants, c'est-à-dire lorsque le parcours dans l'air est faible (inférieur à 6,8 mm, en raison du recouvrement des zones découvertes par des canaux adjacents). Dans une Note [33] nous avons donné une relation empirique, représentant l'ensemble des résultats. Cette géométrie s'étant avérée mauvaise pour la vérification de ce point, nous avons repris les mesures avec le second dispositif, qui nous a fourni les valeurs ci-dessous :

Parcours restant R (mm).	Nombre de particules détectées par seconde $N_0(R)$.
5,08.....	8,8
8,96.....	11,6
18,61.....	14,15
28,58.....	14,95
37,65.....	15,10
37,95.....	15,10

Si $N_0(R)$ est le nombre de particules α , ayant un parcours restant R , détectées par seconde, on vérifie avec une très bonne précision, que la variation de $N_0(R)$ suit la loi

$$N_0(R) = N_\infty (1 - e^{-\lambda R}) \quad (\text{fig. 17}).$$

qui est bien identique à la formule (4.10).

N_∞ est le nombre de particules qu'on détecterait si le parcours des α dans l'écran était infini. On le détermine par approximations successives. λ est la probabilité d'émission de photons de fluorescence par unité de parcours; $\frac{1}{\lambda}$ qui a les dimensions d'une longueur est donc la distance moyenne entre deux centres excités par la même particule.

Avec l'écran utilisé, on trouve, pour moyenne des six mesures consignées dans le tableau ci-dessus

$$\frac{1}{\lambda} = 6,6 \pm 0,4 \text{ mm d'air équivalents.}$$

Cette variation d'efficacité de l'écran avec le parcours restant devra être prise en considération lorsqu'on voudra faire des mesures absolues d'activités de préparations d'émetteurs α .

4.5. Variation de la réponse relative avec le parcours restant et l'énergie des particules α .

Nous avons vu précédemment que les spectres intégraux obtenus pour différentes valeurs de la différence de potentiel entre dynodes, étaient affines. Il en résulte que, pour étudier la variation de S (en volts) ou de S' (en coulombs) avec le parcours restant R ou l'énergie E , il suffit de ne considérer que les résultats obtenus pour une tension donnée. Nous avons choisi les courbes correspondant à $v = 133 \text{ V}$ (soit 1600 V pour la différence de potentiel photocathode-masse).

Les deux méthodes utilisées nous permettent de déterminer directement le parcours restant. Pour passer des parcours aux énergies, nous avons utilisé la courbe de H. A. Bethe [34].

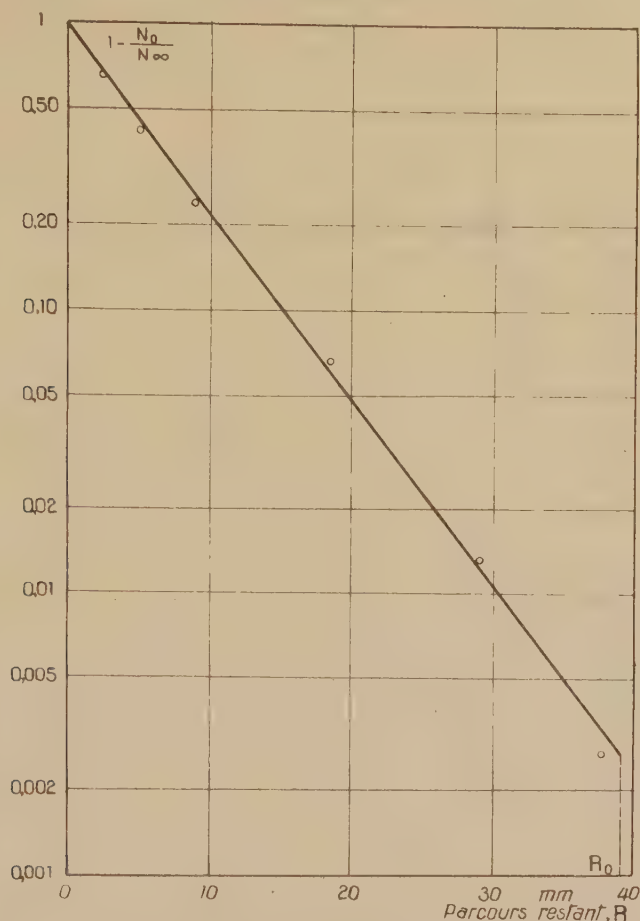


Fig. 17. — Variation de l'efficacité de l'écran avec le parcours restant R.

Si l'on porte sur un même graphique les points expérimentaux

$$S = f(R) \quad \text{et} \quad S' = \frac{I(R)}{N(R)}$$

obtenus avec l'un ou l'autre des dispositifs expérimentaux, on constate que ces deux ensembles de résultats sont cohérents, à condition de faire un choix convenable des unités portées sur l'axe des ordonnées.

4.5.1. DÉTERMINATION DE $S = f(R)$.

On peut schématiser le montage de la façon suivante :

Les spectres intégraux ayant été obtenus pour différentes valeurs du parcours restant, on détermine N_0 par extrapolation pour le seuil nul et l'aire du spectre A, par intégration graphique. On en déduit

$$S = \frac{A}{N_0},$$

S s'exprime en volts.

4.5.2. DÉTERMINATION DE $S' = \frac{I(R)}{N(R)}$.

$I(R)$ est mesuré à l'électromètre à quadrants, en montage hétérostatique symétrique après que les impul-

sions individuelles aient été intégrées par un circuit résistance-capacité. L'électromètre utilisé est le modèle EL 2 de la maison A. O. I. P., fonctionnant sur sa plus grande sensibilité. On ajuste cette dernière pour que la déviation corresponde à toute l'échelle pour l'excitation maximum. Le schéma de l'installation est le suivant :

On dispose la capacité C de telle façon que la constante de temps RC soit suffisamment grande pour amortir les fluctuations statistiques du courant. Il faut vérifier que la résistance d'isolement de la capacité C est grande devant R. Les expériences correspondent à

$$\begin{aligned} R &= 10 \text{ M}\Omega, & C &= 2 \mu\text{F} & (\text{isolé au papier}), \\ R &= 1 \text{ M}\Omega, & C &= 16 \mu\text{F} & (\text{électrochimique, résistance d'isolement} > 20 \text{ M}\Omega). \end{aligned}$$

La constante de temps est donc, respectivement, de 20 et 16 s.

S' est exprimé en coulombs par particule détectée.

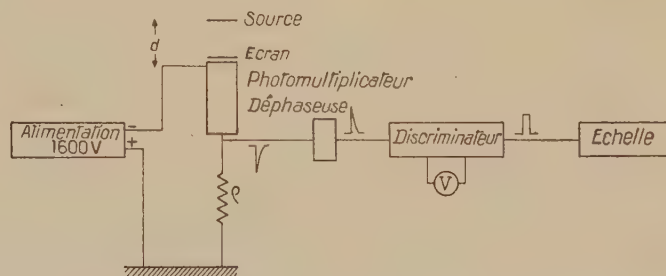


Fig. 17 bis.

Pour passer de S' à S, il faut connaître la capacité C, qui intervient dans la formule (4.4). Sa détermination est difficile car le montage est fait sur table et les capacités parasites des connexions sont loin d'être négligeables devant les capacités localisées, mesurables (capacité de l'électrode collectrice par rapport à la masse, capacité de l'aiguille de l'électromètre par rapport aux autres conducteurs). Nous avons préféré faire coïncider un point de la courbe S(R) avec un point de la courbe S'(R), par exemple celui correspondant au parcours restant maximum. Ceci conduit à écrire

$$S'(Cb/\alpha) = 10^{-10} S(V),$$

avec une précision suffisante.

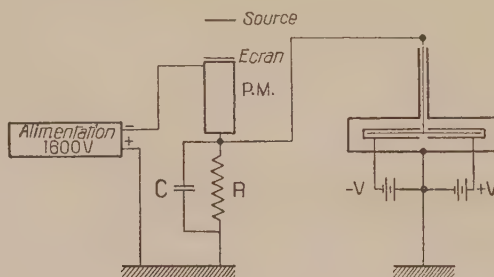


Fig. 17 ter.

On constate sur les figures 18 et 19 que les résultats obtenus par l'une ou l'autre des méthodes, avec l'un ou l'autre des dispositifs, sont cohérents, aux erreurs expérimentales près.

Les erreurs sur le parcours restant sont du même ordre de grandeur pour les deux dispositifs employés et varient de 0,02 mm pour les grands parcours restant à 0,1 mm pour les faibles.

L'erreur sur S ou sur S' est plus délicate à déterminer. N₀ est connu avec une bonne précision, de l'ordre de 5 ‰. Par contre, le tracé des spectres comporte de multiples causes d'erreur qui se répercutent sur la détermination de l'aire, donc de la réponse relative S. Lorsqu'on détermine S', le courant de fuite est affecté de fluctuations assez gênantes, mais dont on parvient à réduire l'importance en augmentant l'intensité de la source et la durée de la constante de temps d'intégration. En effet, si la source fournit N particules détectées par seconde et si la constante de temps est RC, l'écart quadratique moyen est donc égal à $\sqrt{N \cdot RC}$, N.RC étant le nombre de

scintillations sur lequel porte la mesure, et la fluctuation, en valeur relative, variera comme

$$(N.RC)^{-\frac{1}{2}}.$$

Avec $N = 420 \alpha/s$ (source, $20 \mu C$) et $RC = 20 s$, on trouve

$$(N.RC)^{-\frac{1}{2}} = 0,011.$$

L'erreur statistique intervient donc pour 1 % dans l'erreur sur S' .

On fera donc un grand nombre de lectures de la position du spot et l'on en prendra la moyenne. Aussi cette méthode, qui est très rapide, sera-t-elle, en définitive, plus précise que celle des spectres intégraux.

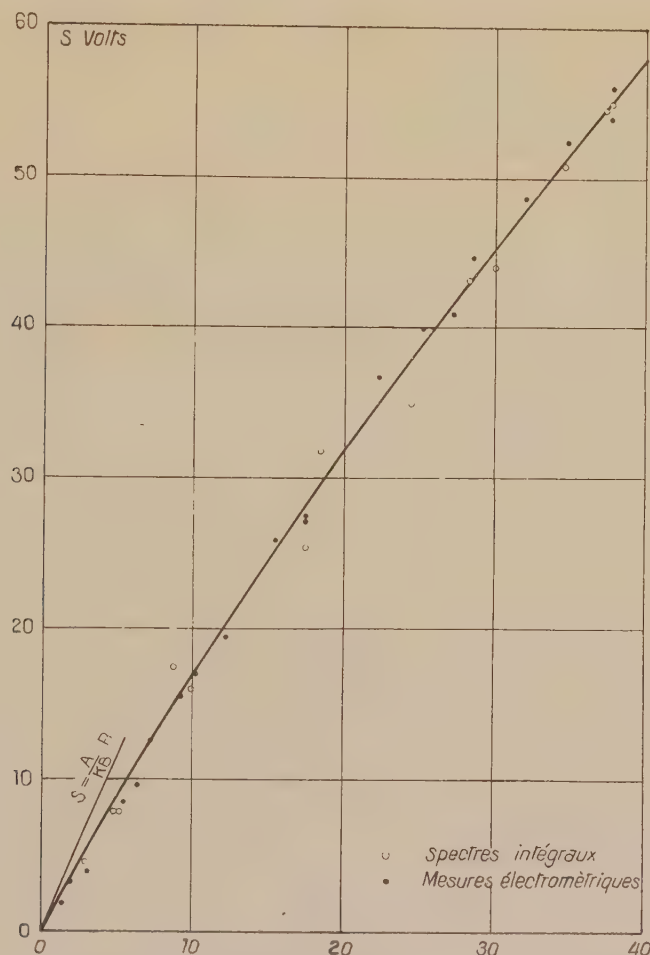


Fig. 18. — Variation de la réponse relative S avec le parcours restant R .

L'examen de l'ensemble des résultats expérimentaux montre que les mesures de courant de fuite sont cohérentes à 3 % près, les mesures de spectres pouvant être affectées d'erreurs atteignant 10 % pour quatre d'entre elles (fig. 18 et 19).

4.5.3. INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS. APPLICATION DE LA FORMULE DE BIRKS.

La courbe de variation de la réponse relative S avec l'énergie restante E des particules (fig. 19) présente le même aspect que celles obtenues par J. B. Birks [35] pour des cristaux organiques soumis à l'impact de particules α de même énergie. Il semble donc naturel de penser qu'on pourra expliquer la relation entre l'intensité de luminescence émise et la perte d'énergie de la particule dans l'écran par une théorie analogue à celle de l'« exciton »

et poser

$$(4.11) \quad \frac{dS}{dr} = \frac{A \frac{dE}{dr}}{1 + k B \frac{dE}{dr}}$$

L'énergie cédée par la particule au cristal sert, comme nous l'avons vu au chapitre précédent, à élever des électrons dans la bande de conduction. Une partie de ces électrons retombe dans la bande de valence par l'inter-

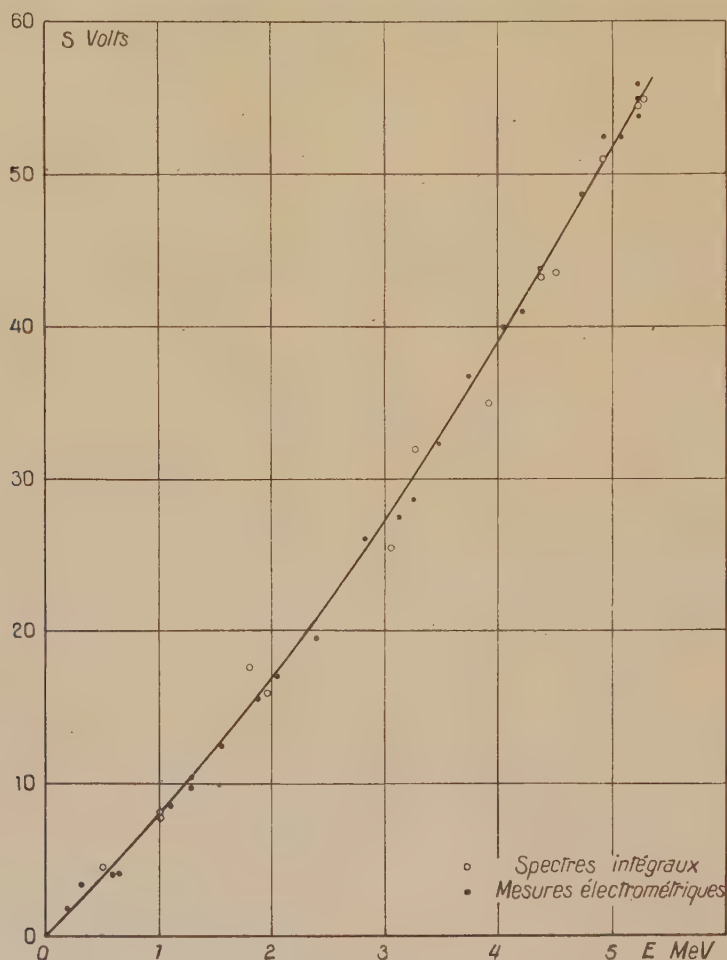


Fig. 19. — Variation de la réponse relative avec l'énergie restante E.

médiaire des niveaux de l'activateur, en émettant un photon. Le reste émettra un photon de phosphorescence qui ne contribuera pas à l'impulsion brève ou sera capturé par les pièges (nickel et pièges créés dans la colonne d'ionisation de la particule).

Soient :

$A \frac{dE}{dr}$ le nombre d'électrons envoyés dans la bande de conduction, r étant le parcours équivalent dans l'air, à 15° C et 760 mm de mercure, $\frac{dE}{dr}$ est la perte d'énergie par unité de parcours;

$B \frac{dE}{dr}$ la concentration locale en pièges, pour une place vacante sur le niveau de l'activateur. Nous désignons, dans les lignes qui suivent, par « piège » l'ensemble des processus de désexcitation sans émission de photon; k le rapport des probabilités de capture de l'électron par un piège et par un niveau de l'activateur.

Nous pouvons écrire :

$$\frac{\text{probabilité de désexcitation par piège}}{k} = \frac{\text{probabilité de désexcitation avec émission}}{1} = \frac{1}{1+k}$$

et le nombre S de photons émis par unité de parcours est tel que

$$\begin{aligned} \frac{dS}{dr} &= \text{nombre d'électrons libérés} \times \frac{\text{probabilité de désexcitation avec émission}}{\text{somme des probabilités}} \\ &= A \frac{dE}{dr} \frac{\frac{1}{1+k}}{\frac{1}{1+k} + \frac{k}{1+k} B \frac{dE}{dr}} = \frac{A \frac{dE}{dr}}{1 + k B \frac{dE}{dr}} \end{aligned}$$

Si $\frac{dE}{dr}$ est grand (cas des particules lourdes chargées), S est proportionnel à r [33], ce qu'on vérifie en première approximation sur la figure 18.

Supposons donc qu'on puisse écrire, pour le sulfure de zinc, soumis à l'impact des particules α la formule (4.11) ou, sous une forme équivalente

$$(4.12) \quad \frac{dS}{dE} = \frac{dS}{dr} \frac{dr}{dE} = \frac{A}{1 + k B \frac{dE}{dr}} = \frac{A}{1 + b \frac{dE}{dr}} \quad \text{en posant } b = kB.$$

On peut déterminer A et b à partir des résultats expérimentaux et de la courbe énergie-parcours [34]. A l'aide de cette dernière, on calcule $\frac{\Delta E}{\Delta R}$ pour des intervalles ΔR égaux et successifs, par exemple $\Delta R = 5$ mm, et l'on remplace l'intégrale par la somme des termes correspondants.

Les équations permettent de calculer les valeurs moyennes adoptées pour la suite des calculs

$$\begin{aligned} A &= 31,4, \\ b &= kB = 13,7; \end{aligned}$$

S étant exprimé en volts, mesurés au discriminateur;
R en millimètres d'air normal;
E en millions d'électrons-volts.

A et kB étant déterminés, il nous faut, si nous voulons obtenir une expression algébrique représentant l'ensemble des résultats, trouver une forme analytique de la perte d'énergie par unité de parcours. Nous avons choisi la relation de Geiger

$$R = \left(\frac{E}{m} \right)^{1,5}$$

qui se prête à un calcul simple et qui est suffisamment précise pour le but recherché.

Si R est exprimé en millimètres et E en millions d'électrons-volts, une approximation bien suffisante est obtenue en posant

$$\begin{aligned} m &= 0,40 & \text{pour } E < 2 \text{ MeV}, \\ m &= 0,46 & \text{pour } E > 2 \text{ MeV}; \end{aligned}$$

m n'est d'ailleurs constant qu'entre 2,5 et 5,5 MeV; au-dessous de 2 MeV, il croît avec l'énergie.

La réponse en fonction de l'énergie s'exprimera, si l'on tient compte de la formule de Birks, par l'intégrale

$$S = \int_0^E \frac{A dE}{1 + kB \frac{dE}{dR}}.$$

Mais

$$\begin{aligned} R &= \left(\frac{E}{m} \right)^{1,5}, & \frac{dE}{dR} &= \frac{2}{3} m^{\frac{2}{3}} E^{-\frac{1}{2}}, \\ S &= \int_0^E \frac{A dE}{1 + \frac{2kBm^{\frac{2}{3}}}{3} E^{-\frac{1}{2}}}. \end{aligned}$$

Posons $c = \frac{2 k B m^{\frac{5}{2}}}{3}$. Nous obtenons par quadrature

$$S = A \left\{ 2 c^2 \log \left(1 + \frac{E^{\frac{1}{2}}}{c} \right) - 2 c E^{\frac{1}{2}} + E \right\},$$

que nous pouvons mettre sous forme réduite, en posant $y = \frac{E^{\frac{1}{2}}}{c} = \frac{3 E^{\frac{1}{2}}}{2 k B m^{\frac{5}{2}}}$,

$$(4.13) \quad S = 2 A c^2 \left\{ \log(1 + y) + \frac{y^2}{2} - y \right\}.$$

D'une façon analogue, on intégrera la formule (4.11) pour obtenir la réponse en fonction du parcours et l'on obtiendra

$$(4.14) \quad S = \frac{8 A k^2 B^2 m^3}{9} \left\{ \log(1 + x) + \frac{x^2}{2} - x \right\}, \quad \text{où } x = \frac{3 R^{\frac{1}{3}}}{2 B k m}.$$

En remplaçant A, kB et m par leurs valeurs, on obtient les résultats consignés dans le tableau ci-dessous :

R (mm).	E Me V.	S(volts)	
		calculé.	expérimental.
3,08.....	0,50	2,58	4,60
5,08.....	1,01	6,94	8,1
9,88.....	1,96	17,20	15,9
17,58.....	3,11	27,74	27,3
25,36.....	4,04	39,4	40,0
34,49.....	4,93	51,3	51,0
37,95.....	5,26	55,8	55

L'accord est suffisamment bon, compte tenu des approximations faites pour intégrer la formule de Birks.

Si l'on considère que la loi de Geiger constitue une relation trop inexacte, on peut essayer d'utiliser, pour expression analytique de la perte d'énergie par unité de parcours, la loi de Bethe qui, dans le domaine non relativiste qui nous intéresse ici, s'écrit

$$-\frac{dE}{dR} = 4 \pi N Z \frac{\xi^2 e^4}{m V^2} \log \frac{2 m V^2}{I},$$

N est le nombre d'atomes par centimètre cube du milieu ralentisseur et Z son numéro atomique;

ξ la charge de la particule incidente, M sa masse, V sa vitesse, E son énergie;

e la charge de l'électron, m sa masse au repos;

I l'énergie caractéristique du milieu ralentisseur (moyenne entre les diverses énergies d'excitation et d'ionisation).

Nous exprimerons la loi de Bethe sous la forme

$$(4.15) \quad -\frac{dE}{dR} = 8 \pi N Z e^4 \frac{M}{m} \frac{1}{E} \log \frac{4 m}{M} \frac{E}{I},$$

en fonction de l'énergie de la particule α .

Mais avec cette loi, il est impossible d'effectuer l'intégration des formules (4.11) et (4.12) et l'on doit se contenter d'un résultat approché.

4.5.4. ÉCART A LA LOI LINÉAIRE.

H. Kallmann [6] indique pour la relation entre S et E une fonction linéaire. Nous avons donné [33] une loi linéaire de variation de S avec R.

L'ensemble des résultats que nous rapportons ici permet toutefois de mettre en évidence la concavité de la courbe.

Si nous développons en série la formule (4.14), on voit que le premier terme non nul du développement est en x^3 , c'est-à-dire en R,

$$S = \frac{8}{9} A (kB)^2 m^3 \left\{ \frac{x^3}{3} - \frac{x^4}{4} + \dots + (-1)^{n+1} \frac{x^n}{n} \right\}.$$

Soit

$$(4.16) \quad S = \frac{a}{b} R - \frac{3a}{b} R \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n+3} \left(\frac{R^{\frac{4}{3}}}{C} \right)^n.$$

Les courbes de la figure 20 donnent l'écart à la loi linéaire calculé soit par la formule (4.16) ci-dessus, c'est-à-dire en partant de la loi de Geiger, soit par intégration graphique de la loi de Bethe, mise sous la forme (4.15).

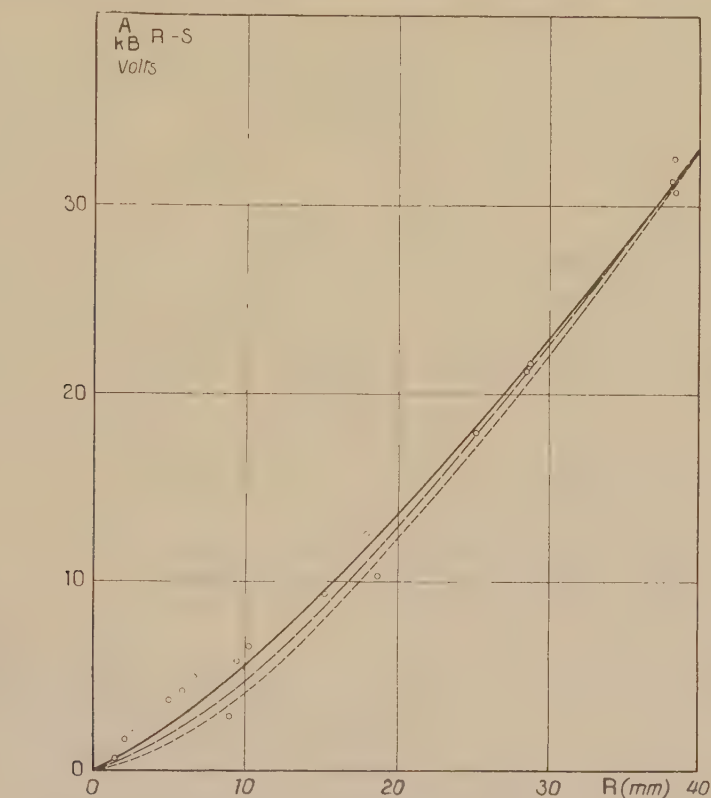


Fig. 20. — Écart à la loi linéaire.
 ———— Courbe déduite de la loi de Geiger;
 - - - - - » » » » Bethe (milieu léger);
 » » » » » (milieu lourd).
 Points : écarts des points expérimentaux avec, la loi linéaire.

L'écart à la loi linéaire est donc lié de façon intrinsèque à la perte d'énergie par unité de parcours de la particule et non au procédé expérimental ou à l'expression analytique utilisée pour intégrer (4.11).

4.6. Courant d'obscurité.

En l'absence d'excitation de la photocathode, on recueille des charges sur l'électrode collectrice. L'écoulement de ces charges constitue le courant d'obscurité dont les origines sont principalement les fuites ohmiques, l'émission thermionique de la photocathode et des dynodes et l'émission due au champ électrique.

Nous avons étudié la variation de ce courant mesuré à l'électromètre avec la tension entre dynode et obtenu les résultats ci-dessous :

φ (volts/étage).	$I_0 \cdot 10^{-9}$ A.	φ (volts/étage).	$I_0 \cdot 10^{-7}$
100.....	11,5	150.....	28,9
108.....	11,5	158.....	40,4
116,5.....	11,5	166.....	63,5
125.....	14,4	175.....	80,8
133.....	17,3	184.....	150
141.....	17,3		

On peut le considérer comme somme d'un courant dû à l'émission de champ, variant exponentiellement avec la tension et d'une composante ohmique, correspondant à une résistance $R = 1,2 \cdot 10^{11} \Omega$ (fig. 21).

Ces valeurs sont en bon accord avec celles fournies par le constructeur (voir [3]) pour les photomultiplicateurs EMI 5311.

4.7. Conclusion.

De ces résultats, nous tirons un argument supplémentaire en faveur de la linéarité de ce type de photomultiplicateurs même lorsque la charge recueillie entraîne une variation importante de potentiel de l'électrode collectrice, puisque, dans tout le domaine étudié, le comportement du détecteur peut être décrit à l'aide de lois antérieurement connues, sans qu'on soit amené à faire des hypothèses restrictives et sans que les écarts entre le comportement calculé et les résultats des mesures dépassent les erreurs expérimentales.

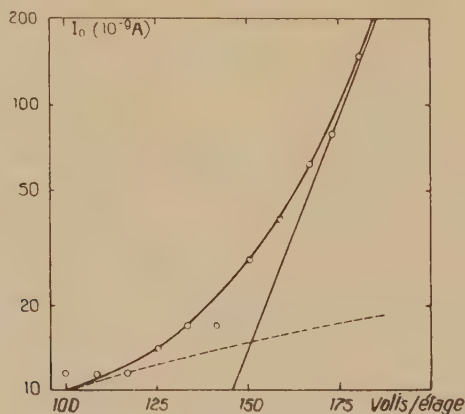


Fig. 21.

Chemin faisant, nous avons déterminé une loi de variation d'efficacité de l'écran en fonction du parcours restant qui peut permettre de transformer les numérations de particules en mesure absolue de l'activité de préparations d'émetteurs α . On peut facilement y rattacher le problème de la mesure des périodes.

La relation $S = f(R)$ permet, d'autre part, de comparer le parcours des particules α émises par un corps radioactif au parcours bien connu des particules α du polonium, c'est-à-dire de faire des mesures relatives de parcours et, par conséquent, d'énergie.

Dans les deux chapitres qui vont suivre, nous envisagerons quelques applications à la détermination des énergies et des périodes et nous décrirons une installation de numération où la stabilité de l'appareil est mise à profit pour résoudre divers problèmes pratiques.

CHAPITRE V.

MESURE DES ÉNERGIES ET DES PÉRIODES. APPLICATION A L'ÉTUDE DE LA CONTAMINATION DE L'AIR.

5.1. Détermination de l'énergie des particules α émises par ^{239}Pu .

Cette mesure est une application directe de la relation (4.14) entre la réponse relative et le parcours restant, que nous avons donnée au chapitre précédent.

On détermine, par tracé du spectre intégral, la taille moyenne des impulsions obtenues avec une préparation mince de plutonium, canalisée, et dont les particules α effectuent dans l'air (15° C, 760 mm Hg) un parcours moyen de 1,33 mm. On trouve ainsi

$$S = 51,7 \text{ V.}$$

Or, nous avons trouvé, avec la préparation de polonium, les valeurs suivantes :

R (mm).	S (volts).
34,49	51,0
37,65	54,7
37,95	55

Si, entre ces points, on assimile la courbe $S(R)$ à une droite, on trouve, pour le parcours dans l'écran des α du plutonium :

$$R = 35,09 \pm 0,10 \text{ mm,}$$

soit, pour le parcours total

$$R_0 = 36,4 \pm 0,1 \text{ mm d'air (15° C, 760 mm Hg).}$$

En se reportant à la courbe énergie-parcours de H. A. Bethe [34], on obtient

$$E = 5,14 \pm 0,01 \text{ MeV.}$$

Dans ce domaine, toutes les courbes énergie-parcours donnent des résultats voisins. Nous pouvons donc considérer ce résultat comme satisfaisant.

En raison de la structure fine du plutonium, le parcours que nous avons mesuré ne correspond pas au groupe de rayons α de plus grande énergie. L'existence d'une structure fine entraîne un étalement du spectre intégral et la hauteur moyenne d'impulsion est diminuée.

S. Rosenblum, M. Valadarès et B. Goldschmidt [36] ont obtenu au spectrographe magnétique

$$\begin{aligned} E_{\alpha_0} &= 5,147 \text{ MeV,} \\ E(\alpha_0 - \alpha_1) &= 50 \text{ keV.} \end{aligned}$$

Selon les résultats de F. Asaro et I. Perlman [37] l'énergie moyenne pondérée du plutonium est

$$E = 5,142 \text{ MeV.}$$

C'est le parcours correspondant à cette énergie pondérée que nous avons mesuré.

La détermination directe du parcours à la chambre d'ionisation double [15] a donné pour parcours maximum dans l'air

$$R = 3,68 \text{ cm (15° C, 760 mm Hg).}$$

avec une fluctuation

$$\alpha = 0,11 \text{ cm,}$$

H. P. De [38] a obtenu, à la chambre de Wilson :

$$R = 3,5 \text{ cm (15}^\circ\text{C, 760 mm Hg),}$$

5.2. Contamination de l'air.

L'air contient normalement les radioéléments gazeux des familles naturelles, en équilibre radioactif avec leurs descendants. Pratiquement, seuls le radon et le thoron existent en quantité décelable.

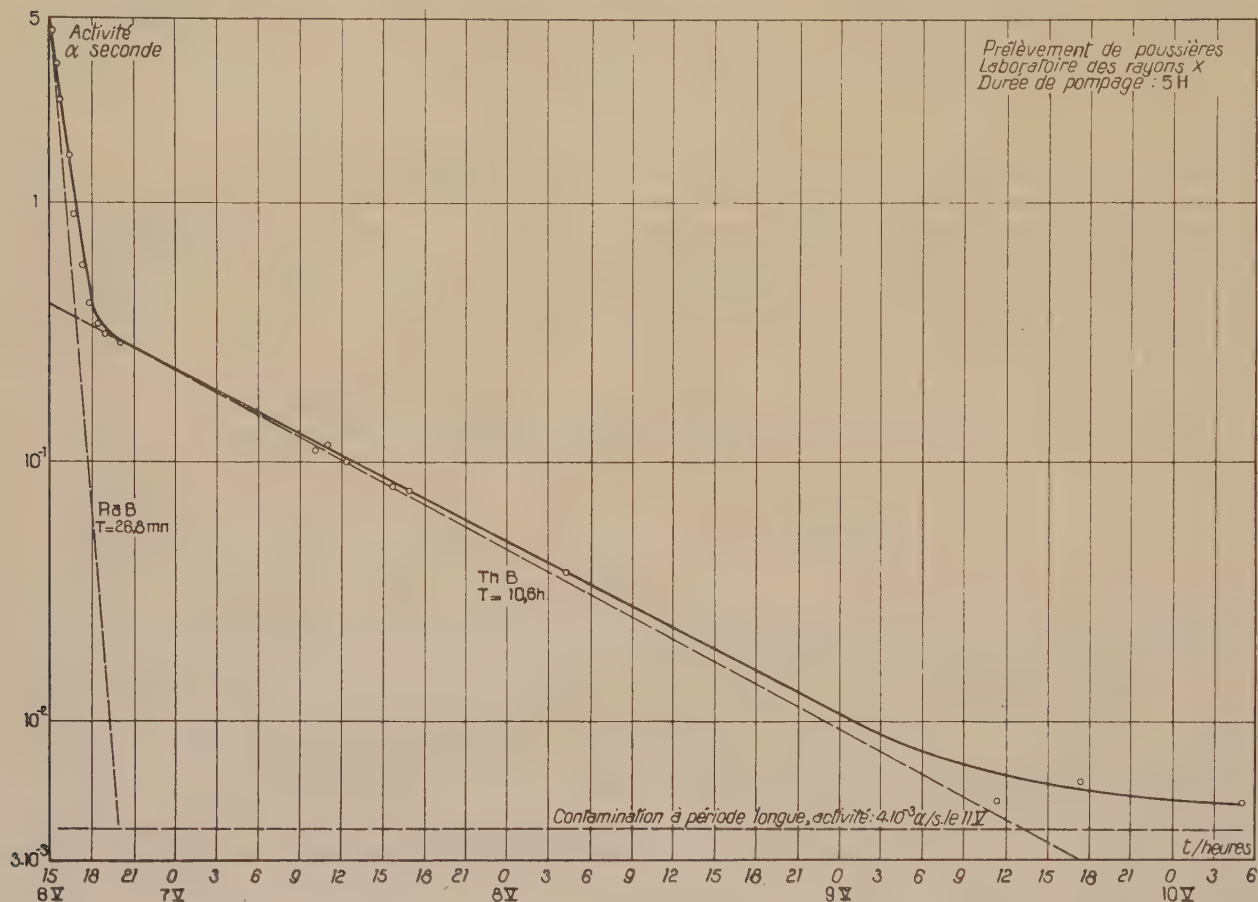


Fig. 22 a.

Il peut s'y ajouter accidentellement d'autres éléments radioactifs, soit par suite de la manipulation de ces corps en milieu mal ventilé (laboratoires, mines, usines d'extraction), soit par épandage dans l'atmosphère de produits fissibles lors d'une explosion atomique.

Au-dessus des continents, l'atmosphère contient de l'ordre de 10^{16} Curie de radon par centimètre cube et environ 100 fois moins de thoron. La contamination de l'air peut être déterminée de diverses façons. Parmi les réalisations françaises récentes, l'échantillon à étudier sert au remplissage d'une chambre d'ionisation [41], est dirigé sur une émulsion photographique [42] ou un détecteur approprié, par exemple, un compteur à étincelles [43]. La seconde de ces méthodes permet seule d'identifier le radioélément en mesurant la longueur des traces qui ont leur origine dans la gélatine.

On peut enfin recueillir les poussières de l'air sur un filtre et faire la numération des particules α émises ou redissoudre le dépôt et identifier les émetteurs, par leur énergie [44] (voir, à ce sujet, la Thèse de J. Labeyrie : *Mesure des concentrations et propriétés des aérosols radioactifs émetteurs α* , Paris, 1953), la teneur en radon de l'air a été étudiée en fonction des conditions météorologiques pour Londres [45] à l'aide d'un filtre à air et par remplissage d'une chambre d'ionisation.

Considérons le cas de l'air normal. Lorsqu'on fait passer un grand volume d'air à travers un papier filtre,

par pompage, on recueille les poussières qui ont fixé à leur surface les radioéléments du dépôt actif, les têtes de familles gazeuses n'étant pas retenues. De la sorte, la décroissance de l'activité de l'aérosol est régie par les corps émetteurs β à longue période (RaB, $T = 26,8$ mn et ThB, $T = 10,6$ h). Si le pompage est long — une nuit par

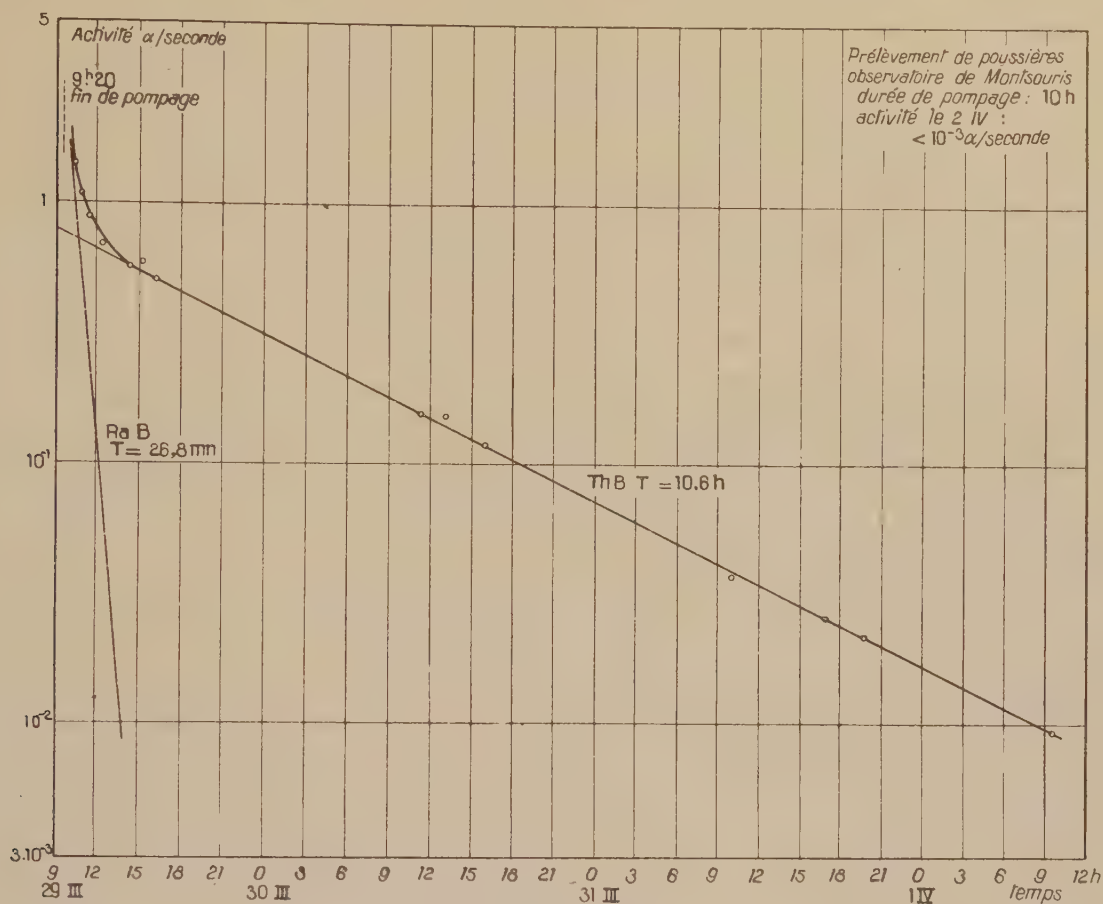
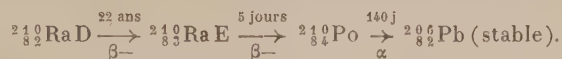


Fig. 22 b.

exemple — on voit que ces émetteurs seront en équilibre radioactifs avec leurs descendants. On observera ces deux périodes et, si l'on suit l'évolution pendant plusieurs mois, on verra s'établir l'activité du polonium, par suite de la filiation :



Donc, si l'air a été contaminé accidentellement par un émetteur α , on constatera une activité résiduelle au bout de quelques jours, lorsque tout le ThB aura été détruit. A ce moment, on pourra redissoudre le dépôt et identifier l'émetteur à la chambre d'ionisation à impulsions, ou par imprégnation de plaques photographiques.

Expérimentalement, on doit alterner les mesures d'activité du dépôt et les mesures du mouvement propre de l'installation, pour éliminer les variations de ce dernier.

Les dépôts sur filtre nous ont été initialement fournis par l'Observatoire de Montsouris.

Par la suite, tant dans le but d'observer la décroissance de RaB que d'essayer de mettre en évidence une activité à longue période, nous avons également fait des prélèvements au laboratoire, dans des pièces qui avaient été contaminées par suite de la manipulation de sels d'uranium et de thorium. Quelques courbes obtenues sont reproduites sur la figure 22.

CHAPITRE VI.

NUMÉRATION PRÉCISE DES PARTICULES α ; APPLICATION A QUELQUES PROBLÈMES PRATIQUES.

6.1. Installations de comptage.

Nous avons signalé au chapitre précédent qu'une des difficultés de la numération précise de particules α résidait dans l'obtention de conditions géométriques rigoureusement reproductibles.

Cette difficulté se retrouve pour toutes les méthodes de détection (chambre d'ionisation à courant ou à impulsions, compteur cloche, etc.). Dans le cas de la détection par scintillations, s'y ajoute le problème de l'étanchéité à la lumière du système scintillateur-photomultiplicateur.

Pour réaliser ces deux conditions, nous avons cherché à établir un passeur d'échantillon qui satisfait les points suivants :

- distance source-écran aussi réduite que possible et invariante lors des changements de source;
- centrage de la source par rapport à l'écran;
- étanchéité à la lumière : le passeur d'échantillon devra se visser sur le carter métallique du photomultiplicateur;
- étanchéité à la lumière : la source doit pouvoir être changée sans qu'il soit nécessaire de couper la tension appliquée au photomultiplicateur et les comptages doivent pouvoir reprendre immédiatement après le changement de source;
- sécurité d'emploi : les fausses manœuvres qui exposeraient la photocathode à la lumière doivent être rendues impossibles.

Il va sans dire que la partie électronique du montage doit être aussi stable que possible.

Nous ne reviendrons pas sur les solutions adoptées, qui ont été étudiées en détail au chapitre II. Compte tenu de l'expérience acquise, la résistance de fuite du photomultiplicateur a été abaissée à $1\text{ M}\Omega$, la capacité de liaison à 150 pF et les constantes de temps du discriminateur notablement diminuées ($5\,000\text{ pF}$ pour les découplages de grilles, 1000 pF pour la liaison anode-grille du tube EFF 51).

Alimentation du discriminateur. — La tension stabilisée $+250\text{ V}$ est obtenue à l'aide d'une alimentation de type courant au laboratoire, dont le schéma, dû à R. Génin [46], comporte un amplificateur à courant continu à deux étages. Une fraction de la tension de sortie est comparée à la tension de référence fournie par un tube à gaz 85 A 1, dans un amplificateur de différence symétrique, constitué d'une double triode 6 J 6 ou ECC 40. Le signal de déséquilibre est amplifié par une pentode EF 42 et contrôle un rhéostat électronique, formé de trois tubes 6 V 6, montés en parallèle et fonctionnant en amplificateur à cathode asservie.

Les caractéristiques de cette alimentation sont les suivantes :

- Tension de sortie : ajustable entre 200 et 275 V ;
 - Débit maximum : 120 mA ;
 - Résistance interne : $1,6\ \Omega$;
 - Coefficient de stabilisation : $S = 370$;
 - Tension résiduelle à 100 C/s : $1,4 \cdot 10^{-3}\text{ V}_{\text{eff}}$.
- La tension de chauffage des filaments n'est pas stabilisée.

Échelle de numération. — Les impulsions fournies par le discriminateur sont enregistrées par une échelle de $10\,000$ à quatre tubes compteurs E 1 T, suivis d'un numérateur mécanique. Sa capacité totale est, par suite, de 100 millions. Le circuit d'entrée de l'échelle peut admettre $30\,000$ impulsions/s, régulièrement réparties dans le temps. La perte de comptage qui résulte du caractère aléatoire de la distribution des impulsions réelles peut

être corrigée par une formule analogue à celle donnée au chapitre II, en 2.3.2, soit

$$N' = \frac{N}{1 - N\tau},$$

N étant le nombre d'impulsions par seconde comptées et N' le nombre d'impulsions par seconde atteignant l'échelle, $\tau = 3.10^{-5}$ s. La correction ainsi introduite est de l'ordre de 1 0/100, avec les taux de comptage auxquels nous nous sommes limité.

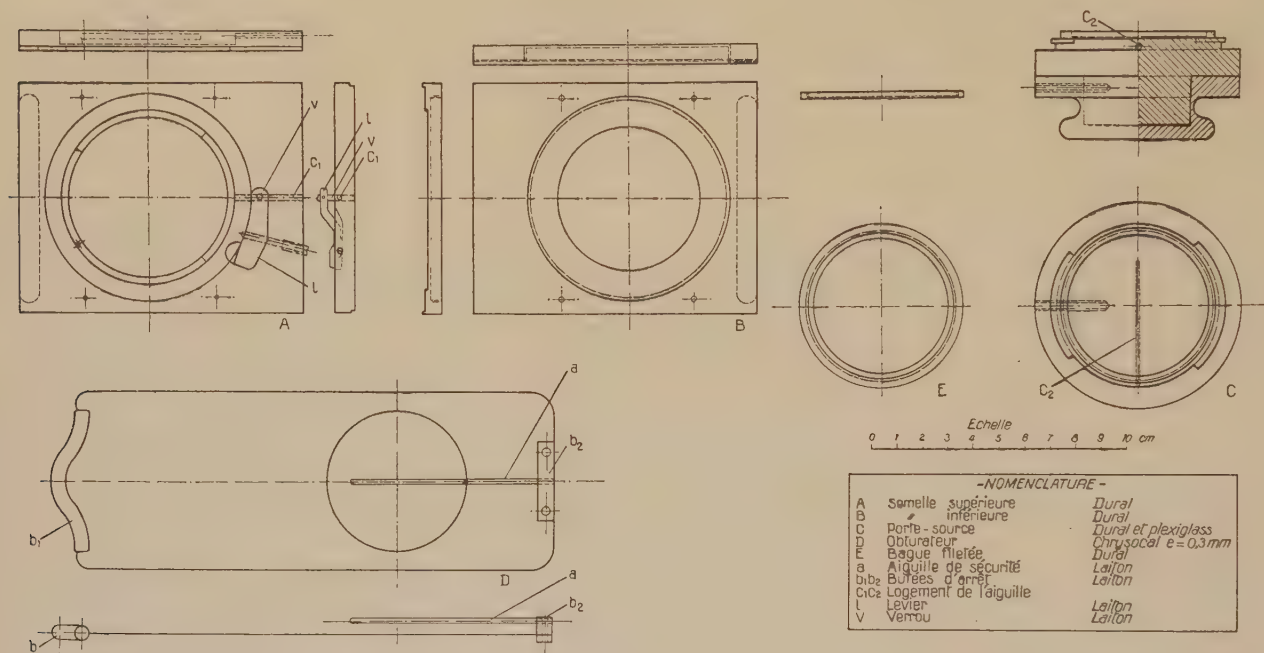


Fig. 23.

6.1.1. CONDUIT DE LUMIÈRE.

Dans le premier problème qui nous a été posé (étude de dépôts minces d'oxyde d'uranium U_3O_8), les dimensions de la source nous étaient imposées : dépôt de 50 mm de diamètre, au centre d'un disque de platine de 54 mm de diamètre et 0,5 mm d'épaisseur. Nous disposions au laboratoire de photomultiplicateur EMI de deux types :

EMI 5311, diamètre de la photocathode : 25,4 mm;

EMI 6260, " " : 44 mm;

Pour utiliser toute la surface du dépôt, il était donc nécessaire, dans les deux cas, de disposer d'un écran de sulfure de zinc de diamètre ≥ 50 mm et de transmettre les scintillations à la photocathode par l'intermédiaire d'un conduit de lumière tronconique.

Le plexiglass que nous avons utilisé était relativement opaque à la lumière émise par l'écran, ce qui a pour effet de diminuer la hauteur des impulsions recueillies sur l'électrode collectrice, et, d'autre part, il scintille sous l'effet des rayons γ , ce qui rend inutilement l'appareil sensible au fond du laboratoire et à la manipulation des sources dans son voisinage.

L'importance du premier de ces effets croît avec l'épaisseur du tronc de cône et celle du second avec son volume. D'autre part, l'angle au sommet doit être inférieur à une valeur limite, si l'on veut que tous les rayons pénétrant par la grande face sous une incidence voisine de la normale ressortent par la petite sans subir trop de réflexions sur la paroi latérale [9], [47].

Généralement, on considère que de meilleurs résultats sont obtenus lorsque cette paroi latérale est recouverte d'une couche diffusante, constituée par de la magnésie ou de l'alumine.

Nous avons comparé des cônes de diverses dimensions, recouverts ou non d'alumine, en déplaçant une source ponctuelle de polonium sur l'écran de ZnS, de même diamètre que la grande face. Lorsque le cône est usiné au tour, l'état de surface obtenu avec l'outil à chariotier donne à la paroi latérale un pouvoir diffusant suffisant et nous

n'avons pas constaté d'amélioration de la forme des spectres en enduisant cette paroi d'une suspension de magnésie dans du collodion. Finalement, nous avons adopté un cône d'épaisseur 10 mm et de diamètres 52 et 44 mm. Le contact optique entre le cône et la photocathode est assuré par une couche mince d'huile de silicone.

6.1.2. PASSEUR D'ÉCHANTILLON.

La partie fixe du passeur d'échantillon (*fig. 23*) est constituée de deux semelles de dural, fixées rigidement l'une par rapport à l'autre. La semelle inférieure (B) se visse sur l'extrémité ouverte du carter du photomultiplicateur. La semelle supérieure (A) comporte un alésage dans lequel se loge le porte-source (C). Par construction, le logement du porte-source a le même axe que l'ouverture de la semelle inférieure qui sert de guide au porte-écran. Entre les deux semelles, est ménagée, sur toute leur longueur, une cuvette de 0,4 mm de profondeur et de 70 mm de large, où coulisse un obturateur en chrysocal (D), de 0,3 mm d'épaisseur, percé d'un trou de 55 mm de diamètre, qui, en position ouverte se centre sur l'axe de la source. L'amplitude du mouvement de translation de l'obturateur est limitée par les deux butées (b_1 , b_2) qu'il porte et dont l'une ou l'autre vient au contact des semelles. L'une (b_1) sert de poignée de manœuvre.

Caractéristiques des installations de comptage.

	Installation			
	A.	B.	C.	D.
Type de photomultiplicateur.....	EMI 5344.	EMI 6260.	EMI 6260.	EMI 6260.
Tension entre dynodes (V).....	133	170/114 ⁽¹⁾	170/114 ⁽¹⁾	170/114 ⁽¹⁾
Diamètre utile de l'écran (mm).....	57	52	51	51
{ épaisseur (mm).....	60	10	10	10
Cône { Diamètre supérieur (mm).....	59	52	52	52
{ Diamètre inférieur (mm).....	25	44	44	44
Paroi latérale enduite.....	oui	non	non	non
Passeur d'échantillon.....	oui	non ⁽²⁾	oui	oui
Distance source-écran (mm).....	1	1.5	1.2	1.2
Électronique : Résistance de fuite du photomultiplicateur (MΩ).....	9,4	1	1	1
Capacité de liaison photomultiplicateur déphaseuse (pF).....	2 000	150	150	150
Capacité de liaison anode-grille EFF 51 (pF)...	10 000	1 000	1 000	1 000
Date d'entrée en service.....	{ 9 juil. 1954 sans cône 14 sept. 1954 avec cône	31 déc. 1954	19 mars 1955	19 mars 1955
Date d'arrêt.....	18 mars 1955 ⁽³⁾	18 mars 1955 ⁽³⁾	-	-
Durée de fonctionnement (jours).....	252/185	77 ⁽⁴⁾	-	-

Remarques : ⁽¹⁾ Entre photocathode et première dynode et pour les trois dernières dynodes, la résistance de polarisation est 3,3 MΩ. Pour les dynodes intermédiaires, elle est 2,2 MΩ.

⁽²⁾ La source est déposée dans une cuvette annulaire, ménagée dans la rondelle de blocage de l'écran sur le cône.

⁽³⁾ Remplacement par les installations C et D.

⁽⁴⁾ L'installation B, sur laquelle est monté le passeur d'échantillon de A sert depuis le 19 mars 1955 à la surveillance de la contamination de l'air.

Dans la face inférieure du porte-source est creusée une cuvette de 1,5 mm de profondeur et de 55 mm de diamètre, destinée à recevoir le disque de platine et, éventuellement, un canaliseur, si l'on veut travailler en géométrie 50 % (canaux de 1,01 mm de long et de 3,5 mm de diamètre). La source est maintenue dans cette cuvette par une bague filetée (E) dont le fond, de 0,3 mm d'épaisseur, comporte un alésage de 54 mm de diamètre.

Le porte-source, présenté devant son logement de la semelle supérieure, y est maintenu par un emboîtement à filet cassé et verrouillé dans cette position, lorsqu'on ouvre l'obturateur, par une aiguille en laiton (a) de 2 mm de diamètre, solidaire de ce dernier. Cette aiguille coulisse dans une cannelure (c_1) de la semelle supérieure. Il est donc impossible de dévisser le porte-source lorsque le volet est ouvert. En outre, le mouvement de l'aiguille — et, par suite, celui de l'obturateur — est impossible lorsque le porte-source n'est pas en place; le bourrelet de ce dernier, lorsqu'il vient au contact de la semelle supérieure, relève, par l'intermédiaire d'un levier (l), un verrou (v) qui débouchait dans le logement de l'aiguille (c_1).

Les deux semelles sont prolongées d'un côté par un boîtier en fer blanc soudé où vient déboucher l'obturateur. Ce boîtier est, par construction, étanche à la lumière.

On voit ainsi que toutes les conditions mécaniques énoncées pour le passeur d'échantillon sont vérifiées, la solution adoptée pour la sécurité garantissant en outre que la source revient toujours dans la même position.

Les porte-source ont été réalisés en quatre exemplaires, deux étant destinés aux installations de comptage et deux à une chambre d'ionisation double, servant au contrôle des résultats. Ces quatre pièces sont parfaitement interchangeables.

6.1.3. MONTAGE DU PHOTOMULTIPLICATEUR.

Le photomultiplicateur et ses éléments de câblage sont montés sur une bague, fixée à la base du carter de fer par trois tiges coulissantes. De petits ressorts de compression donnent à l'ensemble un jeu axial de 5 mm environ. Après avoir enduit la photocathode de graisse de silicone, on y dépose le cône en veillant à chasser toutes les bulles d'air. Puis, sur la face supérieure du cône, on place un écran de ZnS (Ag, Ni), de même diamètre et on l'y maintient par une bague qui peut s'engager dans l'alésage pratiqué dans la semelle inférieure du passeur d'échantillon. Les ressorts favorisent le centrage et assurent l'assemblage de cet ensemble.

L'appareil est aisément démontable pour les visites de vérification et de nettoyage et l'on est assuré de retrouver la même géométrie lors du remontage.

Le passeur d'échantillon et le support du photomultiplicateur ont été réalisés au laboratoire.

6.1.4. PRINCIPE DES MESURES. CAUSES D'ERREUR.

Le photomultiplicateur étant sous tension depuis quelques jours et les différents appareils ayant atteint leur état de régime, on effectue alternativement des comptages de fond et des particules émises par la source, en jouant avec l'obturateur. On choisit la durée de ces comptages telle que l'erreur statistique ait une valeur donnée à l'avance, par exemple 1 ‰. Avec la plupart des sources que nous avons étudiées, cela exige un comptage sur une dizaine d'heures, et, pratiquement, sur une nuit. Les instants de lancement et d'arrêt sont repérés par rapport à l'horloge parlante.

Les comptages sont faits à seuil fixe, nous avons adopté 1 et 2 V; les spectres intégraux relevés pour différentes positions de la source ponctuelle de polonium sur le cône coïncident, en effet, pour les seuils bas et, par suite, le résultat du comptage est peu affecté par un excentrement du dépôt par rapport à l'axe géométrique du montage.

Afin de déterminer l'erreur due à la variation du seuil de discrimination, on trace un spectre intégral pour une source étendue, dans les conditions de l'expérience, ce qui permet de calculer $\frac{1}{N} \frac{dN}{du}$.

Avec le cône de l'installation A, on trouve ainsi qu'une variation de $\pm 0,02$ V entraîne une variation relative de $\pm 0,1$ % pour le seuil 1 V et de $\pm 0,2$ % pour le seuil 2 V.

Les installations B, C et D conduisent à la même valeur de variation relative, à savoir $\pm 0,05$ % pour le seuil 1 V et $\pm 0,1$ % pour le seuil 2 V lorsque ce dernier varie de $\pm 0,02$ V.

Une erreur plus difficile à évaluer est celle due aux fluctuations de gain du photomultiplicateur provenant soit de son vieillissement, soit des variations de la tension entre dynodes. On s'en met partiellement à l'abri en se plaçant sur le pseudo-palier du spectre intégral, vers les seuils bas. Lorsque l'état de régime est atteint — c'est-à-dire après une semaine de service continu — les variations journalières de la haute tension sont inférieures à 5 V (un quart de division du voltmètre). Comme il est assez difficile de définir quelle erreur du taux de comptage entraîne une telle variation, nous avons jugé plus simple de définir l'erreur expérimentale globale, en utilisant une préparation témoin de plutonium (0,104 μ g) pour étalonner les installations.

A titre d'exemple, le tableau ci-dessous donne les résultats obtenus pour l'installation A.

Seuil.	Date.	Activité.	Seuil.	Date.	Activité.
1 V.....	8 décembre 1954	99,16	2 V.....	10 décembre 1954	98,86
	2 février 1955	98,57		20 " "	98,34
	4 " "	98,66		20 " "	98,28
	7 " "	99,69		3 janvier 1954	98,47
	8 " "	99,06		4 " "	98,46
	9 " "	99,26		10 " "	98,53
	10 " "	99,22		13 " "	98,33
	10 " "	99,24		2 février 1955	97,20
	11 " "	99,20		8 " "	98,34
	14 " "	99,04		14 " "	98,47

On peut observer, dans les jours suivant le 2 février 1955, le retour de l'installation à l'état de régime après un arrêt dû à une panne de l'électronique (remplacement de la valve de l'alimentation). A partir du 8 février, l'activité mesurée s'est « centrée » sur la valeur obtenue avant l'incident.

L'écart maximum est ainsi de 2 ‰ à 1 V et de 6 ‰ à 2 V.

En fait, nous devons signaler que, dans les comptages de dépôts sur disques de platine, une erreur nouvelle intervient, due à un facteur géométrique. Les disques utilisés sont en nombre restreint et, par suite, reviennent assez souvent dans le circuit. Un cycle comprend les opérations suivantes : tarage du disque, électrolyse, séchage, calcination, pesée, comptage, nettoyage par attaque acide et, finalement, stockage avant nouvelle utilisation. Après avoir décrit plusieurs fois ce cycle, ils se bossellent, d'autant plus facilement qu'ils sont relativement minces. Les dénivellations peuvent atteindre 0,5 mm. Elles entraînent une erreur sur l'angle solide sous-tendu en chaque point du disque par le contour du porte-écran, à la fois par variation de la distance source-écran et par l'angle mort qu'introduisent les bosses pour les parties en creux du dépôt.

Des disques épais (1 mm) ont été essayés et leur comportement s'est révélé satisfaisant. A la fin de ce travail, nous avons appris que l'électrolyse se faisait très bien sur disques d'acier inoxydable, dont les qualités mécaniques permettent d'éliminer cette cause d'erreur.

6.2. Application à l'étude des variations de composition isotopique de l'uranium.

L'uranium naturel se compose de trois isotopes; leurs nombres de masse sont 234, 235 et 238. Tous trois sont émetteurs α . Leurs caractéristiques sont données dans le tableau suivant [48].

	Abondance relative.	Probabilité de désintégration.	Section efficace pour les neutrons thermiques	
			de capture.	de fission.
U naturel.....	—	—	7,42 barns	3,92 barns
²³⁴ U.....	0,00518 %	$8,16 \cdot 10^{-14} \text{ s}^{-1}$	89 ± 7 »	0,65 »
²³⁵ U.....	0,719	$4,11 \cdot 10^{-17}$ »	650 »	549 »
²³⁸ U.....	99,274	$4,87 \cdot 10^{-18}$ »	2,80 »	0 »

Dans l'uranium naturel, ²³⁸U et ²³⁴U en filiation, sont en équilibre radioactif.

Toute modification isotopique entraînera une variation de l'activité spécifique, c'est-à-dire du nombre de particules α émises par l'unité de masse de l'échantillon.

Affectons les trois isotopes des indices a , b , c et désignons par m l'abondance relative de chacun, par M sa masse atomique et par λ sa probabilité de désintégration. Soit $\mathcal{N}$ le nombre d'Avogadro et A l'activité spécifique. Nous écrirons, pour un échantillon de 1 g :

$$(6.1) \quad \begin{cases} m_a + m_b + m_c = 1, \\ A = \lambda_a N_a + \lambda_b N_b + \lambda_c N_c = \mathcal{N} \left(\frac{m_a}{M_a} \lambda_a + \frac{m_b}{M_b} \lambda_b + \frac{m_c}{M_c} \lambda_c \right), \end{cases}$$

avec $\lambda_a N_a = \lambda_c N_c$ pour l'uranium naturel.

6.2.1. VARIATION D'ACTIVITÉ SPÉCIFIQUE PAR SÉPARATION ISOTOPIQUE.

Si l'on procède à l'enrichissement par diffusion d'un composé gazeux (hexafluorure d'uranium), ²³⁴U accompagnera ²³⁵U dans la fraction légère. Soient δm_a , δm_b , δm_c les variations des proportions relatives après une tentative de séparation. Si l'on considère l'unité de masse, nous pouvons écrire

$$\delta m_a + \delta m_b + \delta m_c = 0$$

et

$$(6.2) \quad \delta A = \mathcal{N} \left\{ \lambda_a \frac{\delta m_a}{M_a} + \lambda_b \frac{\delta m_b}{M_b} + \lambda_c \frac{\delta m_c}{M_c} \right\}.$$

Le quotient des équations (6.1) et (6.2) nous donne la variation relative d'activité

$$(6.3) \quad \frac{\delta A}{A} = \frac{\delta m_a \left(\frac{\lambda_a}{M_a} - \frac{\lambda_c}{M_c} \right) + \delta m_b \left(\frac{\lambda_b}{M_b} - \frac{\lambda_c}{M_c} \right)}{2 m_a \frac{\lambda_a}{M_a} + m_b \frac{\lambda_b}{M_b}}.$$

On peut montrer que le rapport $\frac{\text{enrichissement en } ^{235}\text{U}}{\text{enrichissement en } ^{234}\text{U}}$ est fonction de la fraction du volume gazeux qui a traversé la paroi. Quand cette fraction est faible, ce rapport vaut $\sqrt{\frac{234 + 6 \times 19}{235 + 6 \times 19}}$ (enrichissement limite), ce qui justifie qu'on écrive

$$(6.4) \quad \frac{\delta m_b}{m_b} = \frac{\delta m_a}{m_a} = 2 \frac{\delta A}{A}.$$

Grâce à sa forte activité spécifique, ^{234}U joue ainsi le rôle de traceur pour ^{235}U .

Nous avons utilisé la formule (6.4) pour déterminer l'enrichissement de dépôts minces de U_3O_8 . Cet enrichissement était obtenu par diffusion gazeuse et l'on pouvait attendre une valeur limite 1,013, soit

$$\frac{\delta m_b}{m_b} = 1,3 \, \%.$$

A l'aide des installations précédemment décrites, nous avons fait les mesures d'activité de 18 sources (9 naturelles et 9 enrichies), de masses connues à 20 γ près. Les dépôts électrolytiques étaient faits par M. Lang.

A titre d'exemple, les résultats obtenus avec l'installation B pour le seuil 1 V sont consignés dans le tableau ci-après.

Activité spécifique.		Activité spécifique.	
Uranium naturel (α /s/mg).	Uranium enrichi (α /s/mg).	Uranium naturel. (α /s/mg).	Uranium enrichi (α s. mg).
8,587	8,732	8,590	8,545
8,642	8,577	8,590	8,648
8,648	8,574	8,493	8,676
8,654	8,738	9,550	8,847
8,575	8,687		

Les masses des dépôts variaient entre 6,553 et 7,765 mg.

Pour l'ensemble des résultats obtenus avec les installations A et B, soit 50 mesures, on peut définir un écart probable, tel qu'il délimite, de part et d'autre de la moyenne arithmétique, une bande contenant les 2/3 des résultats expérimentaux.

Cet écart est de $8,10 \, ^3$, correspondant approximativement à la somme des diverses erreurs que nous avons énumérées (erreur statistique, erreur sur la masse de la source, fluctuations de seuil et de gain du photomultiplicateur).

On obtient finalement :

Activité spécifique de l'uranium naturel : 8,598 α /s/mg;
 » » enrichi : 8,662.

Soit

$$\frac{\delta A}{A} = 0,74 \, \% \quad \text{et} \quad \frac{\delta m_b}{m_b} = 1,5 \, \%.$$

Les 25 couples de mesures qui ont été faites avec le jeu de sources dont nous avons disposé se répartissent approximativement sur une courbe en cloche dont la largeur à mi-hauteur est $\pm 0,25 \, \%$. Nous admettrons donc pour valeur de l'enrichissement

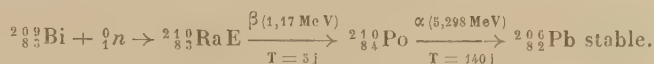
$$\frac{\delta m_b}{m_b} = (1,5 \pm 0,5) \, \%.$$

Simultanément, ces sources ont été étudiées à la chambre d'ionisation à collection électronique de M. R. Génin, dont l'installation possède un haut pouvoir de résolution. Cette méthode, très délicate à mettre en œuvre et dont la partie électronique a demandé plusieurs années de mise au point, n'a pu donner une meilleure précision.

Nous pensons donc que la méthode de comptage α que nous venons d'exposer permet d'obtenir un ordre de grandeur du taux d'enrichissement, lorsque celui-ci est faible. Lorsqu'on considère la simplicité de l'appareillage utilisé, cette méthode supporte avantageusement la comparaison avec la spectrographie de masse ou la chambre d'ionisation à grand pouvoir de résolution.

6.3. Dosage non destructif du bismuth.

Le bismuth ne comprend qu'un seul isotope, $^{209}_{83}\text{Bi}$. Soumis à un flux de neutrons, il se transforme en radium E, qui, à son tour, donne le polonium, selon le schéma d'évolution



L'irradiation aux neutrons thermiques permettra donc de convertir le bismuth en polonium, qu'on caractérisera.

Cette méthode permet de détecter les traces de bismuth dans une couche extrêmement mince, correspondant au parcours des particules α dans l'alliage, c'est-à-dire quelques microns. On pourra ainsi doser en surface le bismuth ou, en faisant des coupes, étudier les inhomogénéités d'un lingot ou d'une pièce.

Nous avons préparé un alliage Pb-Bi, à 1 % de bismuth, que nous avons fait irradier à la Pile de Châtillon.

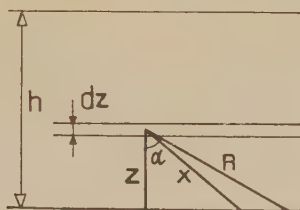


Fig. 24.

L'activité en radium E était $27 \mu\text{C}$ dans l'angle 2π .

Il est aisé de montrer que l'activité en polonium, A , s'établit suivant la loi

$$(6.5) \quad \frac{A_{0(\text{RaE})}}{27} \left\{ \exp\left(-\frac{0,693}{140}t\right) - \exp\left(-\frac{0,693}{5}t\right) \right\},$$

t étant exprimé en jours et $A_{0(\text{RaE})}$ étant l'activité initiale en radium E.

Le maximum d'activité en polonium s'obtient pour $t = 24,9$ jours, mais la moitié de ce maximum est atteinte en 5 jours.

E. Segré [49] donne la courbe énergie-parcours des protons dans le plomb. Une particule α de 5,3 MeV aura très sensiblement même parcours qu'un proton de 1,33 MeV, soit $13,3 \text{ mg/cm}^2$ dans le plomb, ou 12μ . Tout échantillon métallique dans lequel on dosera le bismuth par cette méthode se comportera donc comme une source infiniment épaisse.

Nous allons relier le nombre de particules α comptées au nombre de particules émises par la source, compte tenu de la variation d'efficacité de l'écran avec le parcours restant, donnée par la formule (4.10).

Considérons une source de surface unité, et d'épaisseur h ($h > R$). Soit μ le nombre de rayons émis par seconde par une tranche d'épaisseur dz , parallèle à la face de sortie et N le nombre total de rayons émis dans le même temps par la source

$$\mu = N \frac{dz}{h}.$$

Dans l'angle solide $d\Omega$, il y a dn particules émises

$$dn = \mu \frac{d\Omega}{4\pi} = \frac{\mu}{2} \sin \alpha d\alpha = \frac{\mu}{4} d\left(\frac{z}{x}\right),$$

le nombre total de particules sortantes est

$$(6.6) \quad n_0 = \frac{\mu}{2} \int_0^R dz \int_z^R \{1 - \exp[-\lambda(R-x)]\} \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{z}{x}\right) dx = \frac{N}{4} \frac{R}{h} \left\{1 - \frac{1 - \exp(-\lambda R)}{4\lambda R}\right\}.$$

Il faut tenir compte de la distance source-écran, ε de telle sorte que le parcours R intervenant dans la correction est

$$R = R_0 - \varepsilon = 38,48 - 1,2 = 37,3 \text{ mm}$$

Par suite

$$n_0 = 0,956 \times \frac{N}{4} \frac{R}{h}.$$

Pour les comptages, l'échantillon irradié est transformé en un disque d'épaisseur 1 mm, maintenu dans le porte-source par une bague (pièce E, fig. 23) alésée à 36 mm. La forme géométrique de la source n'intervient pas, pourvu qu'elle recouvre entièrement cet alésage. On trouve ainsi que

$$n_0 = 67,9 \alpha/s.$$

A partir du spectre intégral obtenu et en faisant la correction de temps mort du discriminateur (fig. 8), on trouve

$$N_0 = 76 \alpha/s.$$

L'écart entre n_0 calculé et N_0 expérimental est ainsi de 11. On peut l'attribuer en majeure partie à la valeur que nous avons adoptée pour le parcours des particules α du polonium dans le plomb, ainsi qu'à l'erreur sur l'activité initiale en radium E.

A partir de l'alliage irradié, nous en avons préparé d'autres, de dilutions croissantes. Les résultats obtenus ont été les suivants :

Titre.	Activité à 2 V (α/s).	Titre.	Activité à 2 V (α/s).
$(1 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$	72,3	$(1,1 \pm 0,07) \cdot 10^{-4}$	0,682
$(5,9 \pm 0,05) \cdot 10^{-4}$	3,890	$(1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-5}$	0,005
$(2 \pm 0,07) \cdot 10^{-4}$	1,250	Témoin en plomb.....	0,056

Ces résultats s'entendent fond déduit et correspondant à la moyenne d'activité des deux faces du disque.

L'activité du témoin de plomb est, aux erreurs statistiques près, égale au fond du laboratoire au moment de l'expérience.

En coordonnées doublement logarithmiques, les points expérimentaux s'alignent sur une parallèle à la seconde bissectrice. On peut donc admettre la proportionnalité de l'activité α à la concentration en bismuth jusqu'à 10^{-5} en poids, environ. Au-delà, l'activité α devient inférieure au fond, et l'on ne peut espérer que déceler et non doser les quantités de bismuth inférieures à cette valeur.

Si l'on veut doser le bismuth dans un alliage complexe, il est nécessaire de faire irradier, en même temps que l'échantillon, un témoin contenant une quantité de bismuth du même ordre que celle à doser et dont le pouvoir d'arrêt pour les particules α sera le même que celui de l'alliage, c'est-à-dire dont les constituants principaux seront ceux de l'alliage étudié.

On peut constater, en se reportant à une table de données nucléaires [40], que la plupart des éléments auxquels le bismuth peut être allié ne risquent pas de donner d'activité gênante par irradiation, soit qu'ils aient une période très courte, soit que leur section efficace de capture de neutrons thermiques soit faible.

En résumé, la méthode d'activation à la pile permet de doser le bismuth jusqu'à la concentration de 10^{-4} en poids et de le déceler jusqu'à 10^{-6} . Elle s'avère donc de sensibilité au moins égale à la méthode colorimétrique [50]. Elle a, pour elle, l'avantage d'être non destructive, de pouvoir porter sur des quantités d'alliage très faibles et de permettre des études point par point lorsqu'on peut attendre des variations locales de composition.

Par exemple, si dans l'alliage en fusion Pb-Bi précédemment étudié, on jette un fragment de sodium métallique, il se forme à la surface une couche noirâtre. Après solidification, et mesure de l'activité α , on trouve :

pour la face supérieure (noire) : 20,84 α/s ;
 » inférieure : 2,35 α/s .

Par suite, la concentration varie, dans l'échantillon, de $3 \cdot 10^{-3}$ à $3,4 \cdot 10^{-4}$, la composition globale correspondant à $1,6 \cdot 10^{-3}$ de bismuth.

CONCLUSION.

L'étude des propriétés des écrans de sulfure de zinc nous a amené à doter la partie électronique de notre montage de la stabilité et de la linéarité les plus grandes possibles.

Dans cette ligne, nous avons été amenés à étudier en détail les propriétés d'une triode montée en inverseuse de phase symétrique et nous avons trouvé qu'il était possible d'en obtenir des avantages voisins de ceux du montage à cathode asservie (cathode-follower), en ce qui concerne le gain et le temps de montée.

Indépendamment de R. Wahl et à peu près en même temps, nous avons constaté qu'on améliorait beaucoup la stabilité de seuil des discriminateurs en utilisant pour le circuit bascule une double pentode.

En ce qui concerne le comportement des écrans de sulfure de zinc activés à l'argent et contenant des traces de nickel, nous avons montré que :

1° la loi de décroissance de l'intensité lumineuse en fonction du temps qui s'accorde le mieux avec l'expérience, est à allure exponentielle,

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right);$$

2° le temps de déclin de la luminescence est

$$\tau = (2,9 \pm 0,1) \cdot 10^{-6} \text{ s};$$

3° ces résultats sont compatibles avec les mécanismes de luminescence dans les cristaux minéraux électroluminescents.

D'autre part, pour la détection des particules α , on voit que l'efficacité de l'écran est fonction du parcours restant, selon une loi simple, en accord avec l'hypothèse faite que la densité en grains de sulfure de zinc est uniforme dans l'écran.

La variation de la réponse spécifique en fonction du parcours restant a été déterminée expérimentalement et trouvée compatible avec la théorie de l'exciton de Birks. L'application directe de ces résultats nous a permis d'assigner aux particules α émises par $^{239}_{94}\text{Pu}$, un parcours moyen dans l'air normal $36,4 \pm 0,1$ mm.

Ces recherches ont confirmé le fonctionnement linéaire du photomultiplicateur EMI 5311, pour des différences de potentiel entre dynodes variant de 83 à 183 V.

Si une saturation intervient, elle n'apparaît que pour un courant moyen de l'électrode collectrice de 1,2 mA, ce qui correspond à une valeur de pointe beaucoup plus élevée.

Il est donc possible d'obtenir de ces appareils de très grandes impulsions de tension, lorsqu'on utilise ZnS-Ag comme détecteur sans rien perdre des avantages de la méthode de scintillation, et il nous paraît curieux que la plupart des utilisateurs jugent utile d'amplifier les impulsions qu'ils recueillent.

Les résultats obtenus permettent d'élargir quelque peu les conditions restrictives introduites par P. Leuba pour le fonctionnement linéaire du dernier étage du photomultiplicateur lorsque la hauteur individuelle des impulsions devient de l'ordre de grandeur de la différence de potentiel entre la dernière dynode et l'électrode collectrice.

Parmi les applications qu'on peut faire des comptages lents, nous avons montré que ZnS-Ag constituait un très bon détecteur pour la numération précise des particules α . Rappelons les résultats obtenus :

1° pour l'étude de la contamination de l'air, on peut suivre l'évolution du dépôt actif fixé sur les poussières recueillies et déterminer l'intensité de la contamination à période longue. Si celle-ci est jugée anormale, la mise en solution du dépôt et l'imprégnation de plaques photographiques permettent d'identifier les émetteurs α . L'installation possède un mouvement propre faible, de l'ordre de 4 coups en 1000 s;

2° pour la mesure des variations de composition isotopique de l'uranium, des séries de comptages permettent de déterminer les faibles taux d'enrichissement, correspondant à quelques passages à travers une paroi semi-perméable. Cette méthode donne ainsi des indications sur le fonctionnement des premiers étages d'une instal-

lation de séparation, d'une façon beaucoup plus simple que la spectrographie de masse ou la chambre d'ionisation à impulsion, et avec une précision du même ordre. Pour des enrichissements importants, elle peut être préférable aux autres méthodes, en raison de sa simplicité;

3° enfin, l'irradiation aux neutrons thermiques d'alliages de bismuth permet, par comptage α du polonium formé, de doser quantitativement 10^{-2} à 10^{-4} en poids de bismuth et de détecter jusqu'à 10^{-6} .

Les trois installations de comptage que nous avons réalisées sont en service continu au laboratoire, pour l'étude de la contamination de l'air et pour diverses recherches sur le dépôt électrolytique de l'uranium à partir de solutions de ses sels.

Cet ensemble d'installations constitue une réalisation intéressante dans le domaine des comptages lents, grâce à sa haute stabilité et à son mouvement propre très faible. Outre les applications décrites dans cette thèse, il semble que divers problèmes liés à la numération précise des particules α pourront être résolus.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] Sir E. RUTHERFORD, J. CHADWICK et C. D. ELLIS, *Radiations from radioactive substances*, Cambridge, At the University Press, 1930.
- [2] H. GREINACHER, *Endeavour*, t. 13, n° 52, 1954, p. 190.
- [3] D. BLANC, J. F. DETÈUF et P. MAIGNAN, *J. Phys. Rad.*, t. 13, 1952, p. 567.
- [4] J. F. DETÈUF, D. BLANC et P. MAIGNAN, *J. Phys. Rad.*, t. 13, 1952, p. 573.
- [5] R. CHAMPEIX et P. MARCHET, *Bull. Soc. Franç. Élect.*, t. 4, n° 44, 1954, p. 448.
- [6] H. KALLMANN, *Phys. Rev.*, t. 75, 1949, p. 623.
- [7] A. LALLEMAND, *L'Onde électrique*, décembre 1952, p. 492.
- [8] R. L. CALDWELL et S. E. TURNER, *Nucleonics*, t. 12, n° 12, décembre 1954, p. 47.
- [9] W. H. JORDAN et P. R. BELL, *Nucleonics*, t. 5, n° 4, octobre 1949, p. 30.
- [10] K. I. ROULSTON, *Nucleonics*, t. 7, n° 4, octobre 1950, p. 27.
- [11] R. GÉNIN, *Électronique et Physique nucléaire*, Hermann et C^{ie}, Paris, 1953.
- [12] S. MALATESTA, *Alta Frequenza*, juin-juillet 1949, p. 134 et juin 1950, p. 145; *Radio Technical Digest* (édition française), t. 4, n° 5, 1950, p. 259.
- [13] R. WAHL, *J. Phys. Rad.*, t. 15, 1954, p. 97 A.
- [14] W. L. BUYS, *J. Phys. Rad.*, t. 15, 1954, p. 582.
- [15] O. CHAMBERLAIN, J. W. GOFMAN, E. SEGRÈ et A. C. WAHL, *Phys. Rev.*, t. 71, 1947, p. 529.
- [16] P. LEUBA, *J. Phys. Rad.*, t. 16, 1955, p. 161 et 296.
- [17] B. HAHN et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta*, t. 26, nos 3-4, 1953, p. 271.
- [18] I. BROSER et C. REUBEN, *Z. Naturf.*, t. 9 a, nos 7-8, 1954, p. 689.
- [19] P. LEUBA et J. P. ANTHONY, *C. R. Acad. Sc.*, t. 236, 1953, p. 374.
- [20] D. SMIDT, *Angew. Chem. Dtsch.*, t. 16, 1954, p. 488.
- [21] J. P. ANTHONY, *J. Phys. Rad.*, t. 16, 1955, p. 182.
- [22] S. I. WAWILOV, *Phys. Z. Sowjetunion*, t. 5, 1934, p. 369.
- [23] N. F. MOTT et R. W. GURNEY, *Electronic Processes in Ionic Crystals*, Oxford, At the Clarendon Press, 1948.
- [24] S. T. HENDERSON, *Proc. Roy. Soc.*, t. 173 A, 1939, p. 323.
- [25] W. KURTZNER, *Z. Phys.*, t. 106, nos 9-10, 1937, p. 651.
- [26] N. RIEHL, *Ann. Physik*, t. 29, 1937, p. 640.
- [27] J. W. STRANGE, *Trans. Faraday Soc.*, t. 35, n° 1, 1939, p. 95.
- [28] W. W. ANTONOW-ROMANOWSKY, *Phys. Z. Sowjetunion*, t. 7, 1935, p. 366.
- [29] W. DE GROOT, *Physica*, t. 6, 1939, p. 275.
- [30] J. B. BIRKS, *Scintillation Counters*, Pergamon Press Ltd London, 1953.
- [31] J. F. RAFFLE et E. J. ROBBINS, *Proc. Phys. Soc.*, t. 65 B, janvier 1952, p. 320.
- [32] I. CURIE, *Thèse*, Paris, 1925; *Ann. Phys.*, t. 3, 1925, p. 299.
- [33] J. P. ANTHONY et G. AMBROSINO, *C. R. Acad. Sc.*, t. 236, 1953, p. 1774.
- [34] H. A. BETHE, *Rev. Mod. Phys.*, t. 22, 1950, p. 213.
- [35] J. B. BIRKS, *Proc. Phys. Soc.*, t. 64 A, 1951, p. 574.
- [36] S. ROSENBLUM, M. VALADARÈS et B. GOLDSCHMIDT, *C. R. Acad. Sc.*, t. 230, 1950, p. 638.
- [37] F. ASARO et I. PERLMAN, *Phys. Rev.*, t. 88, 1952, p. 828.
- [38] H. P. DE, *Indian J. Phys.*, t. 23, 1949, p. 363.
- [39] L. BITTMAN, M. FURST et H. KALLMANN, *Phys. Rev.*, t. 87, 1952, p. 83.
- [40] *Nuclear Data National Bureau of Standards*, n° 499 et suppl., 1950.
- [41] G. DELIBRIAS, *J. Phys. Rad.*, t. 15, 1954, p. 78 A.
- [42] Dr E. ERDIK, *J. Phys. Rad.*, t. 15, 1954, p. 445.
- [43] P. SAVEL, *J. Phys. Rad.*, t. 15, 1954, p. 113 A.
- [44] J. S. ALERCIO et J. H. HARLEY, *Nucleonics*, t. 10, n° 11, 1952, p. 87.
- [45] W. ANDERSON, W. V. MAYNEORD et R. C. TURNER, *Nature*, t. 174, n° 4427, 1954, p. 424.
- [46] R. GÉNIN, *J. Phys. Rad.*, t. 14, 1953, p. 345.
- [47] ANONYME, *Nucleonics*, t. 12, n° 3, 1954, p. 26.
- [48] R. L. MURRAY, *Introduction to Nuclear Engineering*, Prentice-Hall, New-York, 1954.
- [49] E. SEGRÉ, *Experimental Nuclear Physics*, vol. I, John Wiley and Sons, New-York.
- [50] G. CHARLOT et D. BÉZIER, *Méthodes modernes d'analyse quantitative minérale*, Masson, Paris, 1949.

TABLE DES MATIÈRES.

SOMMAIRE.....	1
---------------	---

CHAPITRE I.

INTRODUCTION.

Historique des procédés de détection par scintillation.....	3
---	---

CHAPITRE II.

DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE UTILISÉ.

2.1. Photomultiplicateur.....	5
2.2. Alimentation haute tension.....	8
2.3. Discriminateur et alimentation + 250 V.....	8

CHAPITRE III.

ÉTUDE DE LA FLUORESCENCE D'UN ÉCRAN DE SULFURE DE ZINC EXCITÉ PAR DES PARTICULES α .

3.1. Résultats de la théorie de P. Leuba.....	17
3.2. Vérification expérimentale.....	18
3.3. Mécanisme de la luminescence.....	21

CHAPITRE IV.

LINÉARITÉ DU PHOTOMULTIPLICATEUR. RELATION ENTRE LA RÉPONSE DU PHOTOMULTIPLICATEUR ET LE PARCOURS DES PARTICULES α DANS L'ÉCRAN.

4.1. Dispositif expérimental.....	25
4.2. Principe des mesures.....	27
4.3. Influence de la différence de potentiel entre dynodes sur la linéarité et le gain du photomultiplicateur.....	28
4.4. Variation de l'efficacité de l'écran avec le parcours restant des particules α	31
4.5. Variation de la réponse relative avec le parcours restant et l'énergie des particules α	32
4.6. Courant d'obscurité.....	39
4.7. Conclusion.....	40

CHAPITRE V.

MESURE DES ÉNERGIES ET DES PÉRIODES. APPLICATION A L'ÉTUDE DE LA CONTAMINATION DE L'AIR.

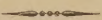
5.1. Détermination de l'énergie des particules α émises par $^{239}_{94}\text{Pu}$	41
5.2. Contamination de l'air.....	42

CHAPITRE VI.

NUMÉRATION PRÉCISE DES PARTICULES α . APPLICATION A QUELQUES PROBLÈMES PRATIQUES.

6.1. Installations de comptage.....	45
6.2. Application à l'étude des variations de composition isotopique de l'uranium.....	49
6.3. Dosage non destructif du bismuth.....	51
CONCLUSION.....	53
BIBLIOGRAPHIE.....	55

DEUXIÈME THÈSE



PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

**Étude, au photomultiplicateur, des scintillations
produites par les particules α dans un écran
de sulfure de zinc.**

Application à la numération précise des particules α .



Vu et approuvé :

Paris, le 16 juin 1955.

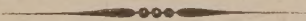
LE DOYEN DE LA FACULTÉ DES SCIENCES,

J. PÉRÈS.

Vu et permis d'imprimer :

LE RECTEUR DE L'ACADÉMIE DE PARIS,

JEAN SARRAILH.



PARIS. — IMPRIMERIE GAUTHIER-VILLARS

55, Quai des Grands-Augustins, 55.

150899-58

Dépôt légal, Imprimeur, 1957, n° 1223.

Dépôt légal, Éditeur, 1957, n° 773.

Achevé d'imprimer le 16 janvier 1959.

Imprimé en France.

PARIS. — IMPRIMERIE GAUTHIER-VILLARS
150899 Quai des Grands-Augustins, 55.

Imprimé en France.